



## THÈSE

présentée pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE**

Spécialité: Physique

par

**Guillaume LABROILLE**

Titre:

**IMAGERIE TRIDIMENSIONNELLE MULTIPHOTONIQUE DES  
TISSUS BIOLOGIQUES À L'AIDE D'IMPULSIONS FAÇONNÉES**

effectuée au Laboratoire d'Optique et Biosciences  
et soutenue publiquement le 15 décembre 2011

devant le jury composé de:

M.	Jérôme Mertz	Président
Mme	Sophie Brasselet	Rapporteur
MM	Jean-Pierre Wolf	Rapporteur
	Nicolas Forget	Examineur
	Nicolas Treps	Examineur
	Emmanuel Beaurepaire	Co-directeur de thèse
	Manuel Joffre	Directeur de thèse



# Remerciements

Ce mémoire rend compte des travaux menés pendant ma thèse au Laboratoire d'Optique et Biosciences à l'Ecole Polytechnique sous la direction de Manuel Joffre et d'Emmanuel Beaurepaire. Ces quelques lignes sont pour moi l'occasion d'exprimer ma gratitude et mon affection à toutes les personnes qui m'ont soutenu pendant ces années.

En premier lieu, je veux remercier Manuel de m'avoir fait confiance et d'avoir toujours su me guider, me conseiller et m'encourager. J'ai conscience du chemin parcouru grâce à lui. L'étendue de ses connaissances, sa rigueur intellectuelle et sa profonde humilité ont été pour moi un véritable modèle et mes choix futurs en garderont l'empreinte.

Merci à Emmanuel pour son soutien sans faille, ses conseils et toutes ses idées sans lesquelles ce travail n'aurait pas pu aboutir.

Je remercie chaleureusement Sophie Brasselet et Jean-Pierre Wolf, pour m'avoir fait l'honneur d'être membres de mon jury de thèse en qualité de rapporteurs, Jérôme Mertz pour avoir présidé ce jury, ainsi que Nicolas Forget et Nicolas Treps pour avoir accepté d'y participer.

Je tiens à remercier Jean-Louis Martin pour son accueil au sein du laboratoire ainsi que tous les membres du LOB pour l'atmosphère conviviale qui a rendu ses années inoubliables.

Je repense à mes débuts au laboratoire aux côtés de Caroline Boudoux et Rajesh S. Pillai qui m'ont non seulement initié à la physique expérimentale mais ont su me communiquer leur passion et leur enthousiasme.

Merci à Pierre Mahou, Nicolas Olivier, Laura Antonucci avec lesquels j'ai eu beaucoup

## Remerciements

---

de plaisir à travailler.

Je n'oublie pas Xavier Solinas pour ses contributions remarquables à l'électronique des expériences et Jean-Marc Sintès pour ses conceptions élégantes en mécanique.

Mes remerciements vont à Delphine Débarre, Patrick Nuernberger et Sergey Lapténok pour leur soutien et leurs lumières lorsque j'étais dans le noir.

La collaboration avec le Laboratoire Kastler Brossel a été tout à fait passionnante et m'a ouvert à de nouveaux champs d'intérêt. Je tiens à remercier tout particulièrement Nicolas Treps, Olivier Pinel et Pu Jian pour la richesse de nos échanges.

Albert Stolow, Adrian Pegoraro et Aaron Slepko m'ont reçu pendant deux mois au NRC à Ottawa. Je les remercie pour leur accueil et tout ce que j'ai pu apprendre à leurs côtés.

Toute ma reconnaissance va à Laure Lachapelle et Christelle Français pour leur travail de l'ombre sans lequel je n'aurais pu mener mes projets à bien.

Antonello de Martino m'a donné la chance de prendre part aux enseignements expérimentaux à l'École Polytechnique en tant que moniteur et je veux saluer sa passion et sa curiosité communicatives.

J'ai par ailleurs eu le plaisir d'encadrer le stage de Master d'Alexandre Mougel, un étudiant curieux et passionné.

Je garderai longtemps en mémoire les discussions scientifiques et politiques intenses (quelques fois interrompues par une partie de ping-pong improvisée) qui animaient le bureau des thésards avec Pierre, Thibault, Stéphane, Ivan et Antoine.

À Paul et Silvan, merci pour ces trois années à refaire le monde.

À Antoine qui a nourri ma réflexion à la fois scientifique, culturelle et politique, merci pour tout !

Enfin je tiens à remercier Pauline pour son indispensable soutien tout au long de ce périple.



# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>3</b>
<b>Introduction</b>	<b>9</b>
<b>1 Façonnage et caractérisation d'impulsions ultra-brèves</b>	<b>13</b>
1.1 Introduction . . . . .	13
1.2 Représentation d'une impulsion ultra-brève . . . . .	13
1.2.1 Notations . . . . .	14
1.2.2 Fonction de transfert . . . . .	15
1.3 Les façonneurs historiques . . . . .	15
1.3.1 Matériaux dispersifs (lentille, lame à faces parallèles etc.) . . . . .	16
1.3.2 Compresseurs à réseaux et à prismes . . . . .	18
1.4 Un façonneur programmable: la ligne 4f . . . . .	25
1.4.1 Principe . . . . .	26
1.4.2 Montage expérimental . . . . .	27
1.4.3 Les SLM à cristaux liquides . . . . .	27
1.4.4 Façonner en amplitude et en phase avec un SLM 2D . . . . .	35
1.4.5 Les couplages spatio-temporels . . . . .	69
1.4.6 Conclusion . . . . .	80
<b>2 Impulsions façonnées et microscopie non-linéaire</b>	<b>81</b>
2.1 Introduction . . . . .	81
2.2 La microscopie de fluorescence excitée à deux photons . . . . .	82
2.2.1 L'absorption à deux photons . . . . .	82
2.2.2 Intérêt pour la microscopie . . . . .	82

## Table des matières

---

2.3	Excitation sélective et microscopie 2PEF . . . . .	84
2.3.1	Intérêt pour l'imagerie biologique . . . . .	84
2.3.2	Le signal de fluorescence . . . . .	84
2.3.3	Contrôler l'absorption à deux photons . . . . .	86
2.3.4	Forme d'impulsion optimale . . . . .	94
2.3.5	Conclusion . . . . .	95
2.4	Les méthodes de mesure au foyer d'un objectif . . . . .	95
2.4.1	Choix des techniques de caractérisation . . . . .	97
2.4.2	Mesure de la durée des impulsions . . . . .	98
2.4.3	Balayer la dérive de fréquence . . . . .	102
2.4.4	FROG interférométrique . . . . .	105
2.4.5	Mesure du spectre à deux photons . . . . .	109
2.4.6	Conclusion . . . . .	113
2.5	Microscopie d'un échantillon biologique dynamique avec des impulsions façonnées . . . . .	114
2.5.1	Microscopie 2PEF avec impulsions façonnées: état de l'art . . . . .	114
2.5.2	Façonnage d'impulsions et commutation rapide . . . . .	115
2.5.3	Résultats et discussions . . . . .	118
2.5.4	Conclusion sur l'expérience . . . . .	124
2.6	Façonnage d'impulsions avec des prismes pour la microscopie à deux pho- tons multiplexée . . . . .	127
2.6.1	Façonner avec des éléments dispersifs . . . . .	127
2.6.2	Multiplexage temporel des impulsions . . . . .	129
2.6.3	Spectres à deux photons . . . . .	130
2.6.4	Microscopie à deux photons sélective d'un embryon en développe- ment . . . . .	131
2.7	Microscopie à deux photon multiplexée de trois fluorophores . . . . .	133
2.7.1	Imager plus de fluorophores . . . . .	134
2.7.2	Multiplexage temporel . . . . .	134
2.7.3	Choix des bandes spectrales de détection . . . . .	135
2.7.4	Formes des spectres à deux photons . . . . .	136

2.7.5	Microscopie d'un échantillon biologique avec trois fluorophores . .	139
2.7.6	Conclusion sur l'expérience et perspectives . . . . .	144
2.8	Conclusion . . . . .	145
<b>3</b>	<b>Mesures optimales</b>	<b>147</b>
3.1	Problématique . . . . .	148
3.2	Approche classique . . . . .	149
3.2.1	Mesurer les fluctuations d'un paramètre du champ électrique . . .	149
3.2.2	La détection homodyne . . . . .	150
3.3	Une mesure optimale . . . . .	153
3.3.1	La borne de Cramér-Rao . . . . .	153
3.3.2	La détection homodyne: une mesure optimale . . . . .	154
3.3.3	Interprétation . . . . .	154
3.4	Quelles mesures envisager ? . . . . .	155
3.4.1	Une mesure optimale de distance dans le vide . . . . .	155
3.4.2	Plusieurs mesures optimales indépendantes dans un milieu dispersif	159
3.4.3	Synthèse des modes de mesure . . . . .	161
3.4.4	Critère de fidélité . . . . .	161
3.5	Comment façonner les modes de mesure ? . . . . .	162
3.5.1	Pourquoi nous n'allons pas utiliser un façonneur 4f . . . . .	163
3.5.2	Façonner avec des milieux biréfringents . . . . .	163
3.6	Simulations numériques . . . . .	173
3.6.1	Hypothèses et paramètres . . . . .	174
3.6.2	Un unique compensateur de Babinet-Soleil-Bravais en Quartz . . .	174
3.6.3	Deux BSB: l'un en Quartz et l'autre en KDP . . . . .	178
3.6.4	Un versus deux BSB . . . . .	183
3.6.5	Conclusion . . . . .	184
3.7	Mise en œuvre expérimentale . . . . .	185
3.7.1	Problématique . . . . .	185
3.7.2	Comment mesurer la fonction de transfert d'un BSB ? . . . . .	185
3.7.3	Composants optiques et source laser . . . . .	188

## Table des matières

---

3.7.4	Résultats . . . . .	189
3.7.5	Conclusion . . . . .	193
3.8	Conclusion . . . . .	194
<b>Conclusion</b>		<b>197</b>
<b>Références bibliographiques</b>		<b>200</b>

# Introduction

Depuis l'avènement de la physique moderne au début du XX<sup>ème</sup> siècle, les physiciens ont développé des outils théoriques et expérimentaux de plus en plus perfectionnés pour comprendre et contrôler la matière. Parallèlement, la biologie moderne s'est concentrée sur des échelles de temps et d'espace de plus en plus petites. Peu à peu sont apparus des points de contact entre ces deux disciplines, donnant naissance aux thématiques dites d'interface.

Le laboratoire d'optique et biosciences (LOB) à l'École Polytechnique est né de cette volonté de créer des synergies entre physiciens et biologistes dans le but de faire émerger de nouveaux outils pour répondre à des problématiques biologiques. L'une des thématiques centrales du laboratoire est l'utilisation d'impulsions lasers ultra-brèves pour l'étude de questions d'intérêt biologique comme par exemple celles en lien avec la dynamique structurale des protéines, des réactions biochimiques, des problématiques de spectroscopie ou de nouvelles techniques d'imagerie, la thématique qui est au cœur cette thèse.

Les liens entre la microscopie et la biologie sont anciens. En effet, la biologie cellulaire est née au XVII<sup>ème</sup> siècle après l'invention des premiers microscopes optiques (notamment par Antoni van Leeuwenhoek) qui ont révélé pour la première fois l'existence d'un monde microscopique vivant. Un des développements récents de la microscopie optique est la microscopie non-linéaire (ou multiphotonique) [1,2], développée initialement dans les années 1990, qui permet de visualiser en trois dimensions un tissu biologique intact, avec une résolution sub-cellulaire et sur quelques centaines de micromètres de profondeur. Cette approche, reposant sur les principes de l'optique non-linéaire [3-5], est un des domaines d'activité du LOB, et consiste à étudier des échantillons biologiques par l'intermédiaire de leur interaction avec des champs électriques très intenses. La

microscopie non-linéaire a été rendue possible grâce au développement des lasers à verrouillage de modes produisant des impulsions de quelques dizaines de femtosecondes ( $10^{-15}$  s) [6] dont l'intensité instantanée est très élevée (de l'ordre de quelques kilowatts) mais dont l'intensité moyenne est compatible avec l'imagerie biologique (soit quelques milliwatts). Cette technique de microscopie consiste à focaliser des impulsions lasers ultra-courtes dans les échantillons par un objectif de microscope de sorte à confiner les impulsions dans un volume d'extension micrométrique. De cette façon l'excitation spatialement confinée procure à cette technique un sectionnement tridimensionnel intrinsèque. Cette caractéristique permet l'acquisition d'images en trois dimensions avec une résolution micrométrique. Le confinement spatio-temporel du champ électrique produit des intensités instantanées de l'ordre de quelques centaines de gigawatts ( $10^9$  Watts) par centimètre carré dans l'échantillon étudié. L'interaction d'un champ électrique aussi intense avec l'échantillon est à l'origine de nombreux processus non-linéaires: fluorescence excitée à deux photons [1, 2], génération de seconde harmonique [7, 8], de troisième harmonique [9–11], mélange à quatre ondes [12–15], etc., dont les signaux respectifs donnent des informations structurales et physiologiques complémentaires sur l'échantillon. L'un des champs de recherche du LOB est de développer la microscopie non-linéaire multimodale [11, 16, 17] qui consiste à acquérir parallèlement plusieurs signaux non-linéaires de façon à obtenir simultanément autant d'information que possible sur les échantillons. Cette thèse s'est inscrite dans la dynamique portée par le laboratoire en ayant pour finalité d'élaborer de nouveaux outils pour la microscopie non-linéaire d'échantillons biologiques avec des impulsions à spectre très large (de l'ordre de 100 nm, soit de durée inférieure à 15 fs) et de forme temporelle façonnée. L'utilisation d'impulsions à spectre très large donne la possibilité d'exciter efficacement un grand nombre d'effets non-linéaires simultanément, comme par exemple l'excitation de différents fluorophores par absorption multiphotonique. Pour pouvoir interpréter les images produites par un microscope non-linéaire il est cependant indispensable de pouvoir identifier l'origine des différents signaux, par exemple pour pouvoir reconnaître les différents fluorophores qui composent une image. Pour cela, notre approche consiste à façonner la forme temporelle des impulsions de sorte à exciter spécifiquement un signal non-linéaire (un fluorophore par exemple). On peut alors contrôler l'excitation des différents processus non-linéaires

en commutant rapidement entre les formes d'impulsions de sorte à faire l'acquisition multiplexée des différents signaux, par exemple la fluorescence excitée à deux photons d'un fluorophore ou un signal Raman stimulé lié à une vibration moléculaire particulière. L'utilisation d'un spectre large offre donc la possibilité d'étudier simultanément une multitude de signaux non-linéaires et la commutation rapide entre différentes formes d'impulsions permet de faire l'acquisition multiplexée des différents signaux.

Les impulsions ultracourtes rendent possible l'excitation sélective d'espèces spécifiques par des processus non-linéaires malgré leur grande largeur spectrale, grâce à la suppression des chemins quantiques indésirables par des interférences destructives. Cette approche, appelée contrôle cohérent, a été notamment appliquée par le groupe de Yaron Silberberg (Weizmann Institute of Science) dès la fin des années 1990. Ils ont montré qu'il était possible de contrôler l'absorption à deux photons dans un système atomique en manipulant la forme temporelle des impulsions excitatrices [18]. Quelques années plus tard, ce même groupe a démontré qu'on pouvait imager sélectivement une vibration moléculaire spécifique en microscopie Raman anti-Stokes cohérente (Coherent Anti-Stokes Raman Scattering en anglais ou CARS) avec une seule impulsion façonnée [19]. Ces expériences ont ouvert la voie à des expériences de microscopie non-linéaire sélective, notamment dans le groupe de Marcos Dantus (Michigan State University) en microscopie à deux photons sélective pour imager sélectivement des molécules sensibles au pH [20,21]. Les travaux du LOB dans ce domaine ont notamment conduit à la première expérience de microscopie à deux photons sélective dans un organisme vivant [22, 23] mais avec des temps d'acquisition relativement longs (supérieurs à 5 minutes) en raison de la technologie de façonnage employée.

A mon arrivée au laboratoire en 2008, la problématique de l'équipe était de rendre ce type d'approche compatible avec l'imagerie *in vivo* d'échantillons biologiques dans des conditions standards en termes de temps d'acquisition et de résolution spatiale, tout en enregistrant simultanément plusieurs images correspondant à des formes d'impulsions différentes.

Nous nous sommes particulièrement intéressés au développement de façonneurs d'impulsions efficaces et à commutation rapide pour la microscopie à deux photons sélective de

plusieurs fluorophores.

Les deux premiers chapitres de cette thèse rendent compte des résultats que nous avons obtenus dans ce domaine. Le premier chapitre présente le façonneur d'impulsions que nous avons implémenté, notamment pour des expériences de microscopie. Le deuxième chapitre expose plusieurs expériences de microscopie à deux photons sélective utilisant des impulsions façonnées.

Le troisième chapitre de cette thèse présente l'utilisation du façonnage d'impulsions de spectre large pour une expérience d'optique quantique. Cette application très différente de la microscopie non-linéaire est née d'une collaboration avec le groupe d'Optique Quantique Multimode du Laboratoire Kastler Brossel (LKB) à l'Ecole Normale Supérieure (ENS). L'équipe du LKB a récemment montré qu'il existait une méthode de détection optimale pour mesurer un paramètre contenu dans la dépendance temporelle d'un champ électrique, lorsque la seule source de bruit provient des fluctuations quantiques du champ électrique [24, 25]. Cette méthode nécessite de produire un champ de forme temporelle adaptée de sorte à mesurer avec la meilleure précision possible le paramètre par une méthode interférométrique. Les applications potentielles de cette approche concernent les mesures ultra-précises de distance [26], de dispersion [25] ou encore la détection d'ondes gravitationnelles [27]. Ce chapitre présentera la technique de façonnage à base de matériaux biréfringents que nous avons mise en place pour produire les champs adaptés à cette application.



# 1 Façonnage et caractérisation d'impulsions ultra-brèves

## 1.1 Introduction

Dès les années 1960, quelques années à peine après les premiers lasers continus, des lasers produisant des impulsions dont la durée est de l'ordre de quelques picosecondes voient le jour. Par la suite, une recherche active a conduit à une réduction considérable de la durée des impulsions et a permis de diversifier les régions spectrales accessibles. De nos jours, il existe une gamme relativement large de lasers commerciaux délivrant des impulsions dont les durées s'étendent de quelques femtosecondes à quelques dizaines de femtosecondes. Parallèlement, se sont développées des méthodes de façonnage et de caractérisation de ces impulsions pour des applications très diverses. Dans ce chapitre, nous allons commencer par exposer quelques techniques classiques de façonnage puis nous présenterons notre propre façonneur d'impulsions programmable basé sur une masque de phase adressé optiquement. Nous nous intéresserons à son fonctionnement ainsi qu'aux artefacts qu'il peut introduire, notamment dans le cadre d'une expérience de microscopie non-linéaire.

## 1.2 Représentation d'une impulsion ultra-brève

Dans le cadre de ce manuscrit de thèse, nous allons nous intéresser aux impulsions que nous manipulons quotidiennement dans notre laboratoire, c'est-à-dire à des impulsions d'une durée de l'ordre d'une dizaine de femtosecondes à 800 nm produites par un oscillateur Titane:Saphir. Typiquement, cela correspond à un spectre de l'ordre de 100 nm de largeur à mi-hauteur.

### 1.2.1 Notations

Les champs électromagnétiques que nous allons considérer sont classiques et caractérisés par le champ électrique réel  $\vec{E}$ , dépendant de l'espace et du temps. En un point de l'espace, on note  $E(t)$  une composante cartésienne du champ électrique. De façon parfaitement équivalente, on peut représenter le champ dans le domaine spectral à l'aide de la transformée de Fourier notée  $\mathcal{F}$  [5]:

$$E(t) = \mathcal{F}[E(\omega)](t) = \int E(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi} \quad (1.1)$$

avec

$$E(\omega) = \mathcal{F}^{-1}[E(t)](\omega) = \int E(t) \exp(i\omega t) dt \quad (1.2)$$

On note  $\mathcal{E}(\omega)$  le champ complexe que l'on définit de la manière suivante:

$$\mathcal{E}(\omega) = 2\Theta(\omega)E(\omega) \quad (1.3)$$

où  $\Theta$  est la fonction de Heaviside. Le champ réel se déduit alors du champ complexe par les relations suivantes:

$$E(\omega) = \frac{1}{2}(\mathcal{E}(\omega) + \mathcal{E}^*(-\omega)) \quad E(t) = \frac{1}{2}(\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}^*(t)) = \text{Re}(\mathcal{E}(t)) \quad (1.4)$$

Que ce soit dans le domaine temporel ou spectral, le champ complexe peut se décomposer en un terme d'amplitude et un terme de phase:

$$\mathcal{E}(t) = |\mathcal{E}(t)| \exp(i\phi(t)) \quad \mathcal{E}(\omega) = |\mathcal{E}(\omega)| \exp(i\varphi(\omega)) \quad (1.5)$$

On appelle  $\phi(t)$  la phase temporelle et  $\varphi(\omega)$  la phase spectrale du champ complexe. Ces grandeurs permettent de définir deux quantités très utiles pour décrire une impulsion:

- la fréquence instantanée  $\Omega(t) = -\frac{d\phi(t)}{dt}$  qui traduit l'évolution temporelle des fréquences d'une impulsion;
- le retard de groupe  $\tau_g(\omega) = \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega}$  qui traduit le temps d'arrivée des différentes

composantes spectrales de l'impulsion.

Dans le cas où l'on décrit le champ en fonction des variables de temps et d'espace, on introduit les transformées de Fourier par rapport à la variable d'espace  $x$  et sa variable conjuguée  $k_x$ :

$$f(x, \omega) = \int \tilde{f}(k_x, \omega) \exp(ik_x x) \frac{dk_x}{2\pi} \quad (1.6)$$

$$\tilde{f}(k_x, \omega) = \int f(x, \omega) \exp(-ik_x x) dx \quad (1.7)$$

Le symbole *tilde* permet ici d'expliciter qu'il s'agit de la transformée de Fourier par rapport à la variable d'espace.

#### 1.2.2 Fonction de transfert

Un dispositif de façonnage d'impulsions [28] est un filtre linéaire, invariant par translation dans le temps et passif (il ne permet pas l'amplification). Ces hypothèses permettent d'écrire dans le domaine spectral le champ transmis  $\mathcal{E}_{out}(\omega)$  comme un simple produit de la fonction de transfert du filtre,  $R(\omega)$ , par le champ incident,  $\mathcal{E}_{in}(\omega)$ :

$$\mathcal{E}_{out}(\omega) = R(\omega) \mathcal{E}_{in}(\omega) \quad (1.8)$$

Dans le domaine temporel, on a donc :

$$\mathcal{E}_{out}(t) = R(t) \otimes \mathcal{E}_{in}(t) \quad (1.9)$$

où  $\otimes$  représente le produit de convolution.

### 1.3 Les façonneurs historiques

Même sans être programmable, tout système optique linéaire passif caractérisé par une fonction de transfert  $R(\omega)$  a pour effet de façonner le profil de l'impulsion qu'il transmet. Il peut donc être considéré comme un dispositif de façonnage d'impulsions, qu'il s'agisse d'un matériau dispersif ou d'un dispositif de compression à prismes ou à réseaux. De

tels systèmes peuvent sembler rudimentaires comparés aux façonneurs programmables qui permettent de délivrer des formes d'impulsions très variées. Néanmoins, ils présentent deux avantages majeurs: ils sont relativement simples à mettre en œuvre et ils ne modifient pas l'aspect spatial du faisceau, contrairement aux façonneurs programmables. Ces deux points justifient donc *a priori* que l'on privilégie leur usage si leur fonction de transfert répond à nos besoins.

### 1.3.1 Matériaux dispersifs (lentille, lame à faces parallèles etc.)

Avant d'étudier la fonction de transfert des compresseurs à réseaux ou à prismes, commençons par rappeler leur usage premier: compenser la déformation subie par les impulsions lorsqu'elles traversent des optiques en verre (lentilles, lames séparatrices, cubes séparateurs de polarisation etc.). Cet effet trouve son origine dans la dépendance spectrale de l'indice de réfraction des optiques, aussi appelée dispersion des optiques.

#### Effet de la dispersion

On choisit généralement des composants optiques de façon à ne pas déformer le spectre ( $|R(\omega)| = cste$ ) et on s'intéresse donc surtout à la phase  $\varphi(\omega)$  de la fonction de transfert. La phase spectrale accumulée dans un matériau dispersif d'épaisseur  $L$  s'écrit  $\varphi(\omega) = k(\omega)L$ , où  $k(\omega) = n(\omega)\omega/c$  est le vecteur d'onde et  $n(\omega)$  l'indice de réfraction du matériau. Les variations de  $\varphi(\omega)$  étant usuellement lentement variables, on a souvent recours à un développement de Taylor centré  $\omega_0$ , la fréquence centrale du laser, pour décrire leur influence sur les impulsions:

$$\varphi(\omega) = \underbrace{\varphi(\omega_0) + \varphi^{(1)}(\omega_0)(\omega - \omega_0)}_{\varphi_{lin}(\omega)} + \sum_{j \geq 2} \underbrace{\frac{\varphi^{(j)}(\omega_0)}{j!}(\omega - \omega_0)^j}_{\varphi_j(\omega)} \quad (1.10)$$

où  $\varphi^{(j)}(\omega_0) = \frac{d^j \varphi}{d\omega^j}$ . Étudions l'impact des différents ordres sur la forme des impulsions.

- Le terme linéaire en fréquence:

$$\varphi_{lin}(\omega) = \varphi(\omega_0) + \varphi^{(1)}(\omega_0)(\omega - \omega_0) = \underbrace{(n(\omega_0) - n_g(\omega_0)) \frac{\omega_0}{c} L}_{\varphi_0} + \omega \underbrace{\frac{n_g L}{c}}_{\omega \tau_0} \quad (1.11)$$

avec  $n_g = n(\omega_0) + \omega_0 \left. \frac{dn}{d\omega} \right|_{\omega_0}$  l'indice de groupe. Ce terme ajoute à la fois un retard pur  $\tau_0$  (proportionnel à l'indice de groupe) qui ne fait que traduire temporellement l'impulsion, mais aussi une phase absolue  $\varphi_0$  qui déphase la porteuse par rapport à l'enveloppe de l'impulsion (Carrier Envelope Phase ou CEP en anglais). La variation de CEP est donc directement proportionnelle à la différence d'indice de phase et d'indice de groupe du matériau.

- Le terme quadratique  $\varphi_2(\omega)$  est le principal responsable de l'allongement de l'impulsion. En effet, l'expression du retard de groupe:

$$\tau_g(\omega) = \frac{d\varphi}{d\omega}(\omega) = \varphi^{(1)}(\omega_0) + \varphi^{(2)}(\omega_0)(\omega - \omega_0) \quad (1.12)$$

indique que les différentes composantes spectrales n'arrivent plus simultanément, ce qui provoque un allongement de l'impulsion. Dans un matériau usuel,  $\varphi^{(2)}(\omega_0) > 0$ , ce qui implique que les composantes spectrales de plus grandes longueurs d'onde arrivent en premier. C'est ce terme qu'on appelle communément le "chirp" (gazouillis en français).

- Les termes d'ordres supérieurs  $\varphi_{j>2}(\omega)$  participent aussi à l'allongement de l'impulsion mais dans une moindre mesure. Afin d'évaluer leurs contributions pour un matériau typique, étudions le cas d'une impulsion de 10 fs (soit un spectre de 100 nm) traversant une lame de silice fondue ( $SiO_2$ ). On note  $\varphi_{NL}(\omega) = \varphi(\omega) - \varphi_{lin}(\omega)$  les contributions d'ordres supérieurs ou égaux à 2 dans le développement de Taylor. En calculant l'impact des différents ordres à l'aide des écarts quadratiques moyens exprimés en valeurs relatives, on obtient:

$$\sqrt{\frac{\langle (\varphi_2(\omega) - \varphi_{NL}(\omega))^2 \rangle}{\langle \varphi_{NL}(\omega)^2 \rangle}} = 0.07 \quad (1.13)$$

$$\sqrt{\frac{\langle (\varphi_2(\omega) + \varphi_3(\omega) - \varphi_{NL}(\omega))^2 \rangle}{\langle \varphi_{NL}(\omega)^2 \rangle}} = 0.002 \quad (1.14)$$

$$\sqrt{\frac{\langle (\varphi_2(\omega) + \varphi_3(\omega) + \varphi_4(\omega) - \varphi_{NL}(\omega))^2 \rangle}{\langle \varphi_{NL}(\omega)^2 \rangle}} = 0.0004 \quad (1.15)$$

où la valeur moyenne est définie de la façon suivante:

$$\langle \varphi(\omega) \rangle = \frac{\int \varphi(\omega) |\mathcal{E}(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi}}{\int |\mathcal{E}(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi}} \quad (1.16)$$

Ces valeurs révèlent qu'un développement à l'ordre 3 de la phase induite par un bloc de verre modélise fidèlement son impact sur la phase spectrale. En effet, dans ce cas, l'erreur quadratique relative du développement tronqué par rapport au terme non-linéaire de la phase est seulement de 0.002. Notons qu'usuellement, on a aussi  $\varphi^{(3)}(\omega_0) > 0$ .

En pratique, l'une des premières ambitions du façonnage d'impulsions est de compenser le terme quadratique de la phase spectrale introduite par les éléments dispersifs. Pour cela, il existe deux dispositifs très classiques: les compresseurs à réseaux et à prismes.

### 1.3.2 Compresseurs à réseaux et à prismes

L'objectif de ces façonneurs est de produire une fonction de transfert d'amplitude spectrale constante et de phase spectrale constituée essentiellement d'un terme quadratique négatif (de façon à compenser la dispersion naturelle) et ajustable. Un compresseur sera d'autant meilleur qu'il compense aussi le terme d'ordre 3 sans introduire d'ordres supérieurs.

#### Compresseurs à réseaux

En 1969, Treacy [29] est le premier à décrire un schéma de compresseur à réseaux du type représenté Fig. 1.1. Les réseaux de diffraction assurent que les composantes spectrales ont des chemins différents, ce qui permet d'avoir des retards de groupe variant d'une composante à l'autre. Nous allons reprendre le développement théorique de la fonction de transfert de ce dispositif car c'est un résultat simple à établir qu'il peut être intéressant de reprendre avec des notations unifiées. On s'intéresse plus précisément à la phase spectrale de la fonction de transfert et on supposera l'efficacité de diffraction des réseaux

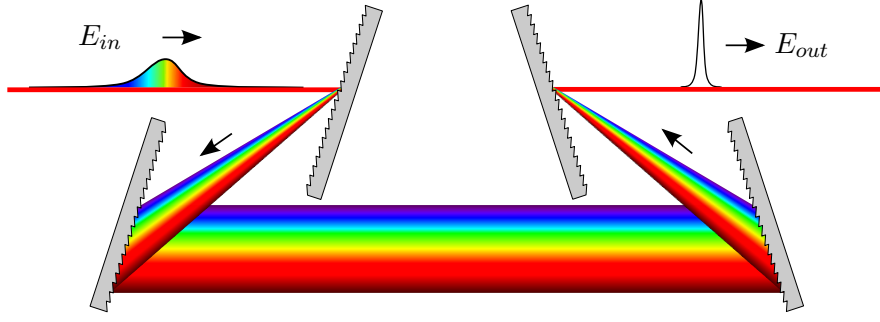


Figure 1.1: Schéma d'un compresseur à réseaux.

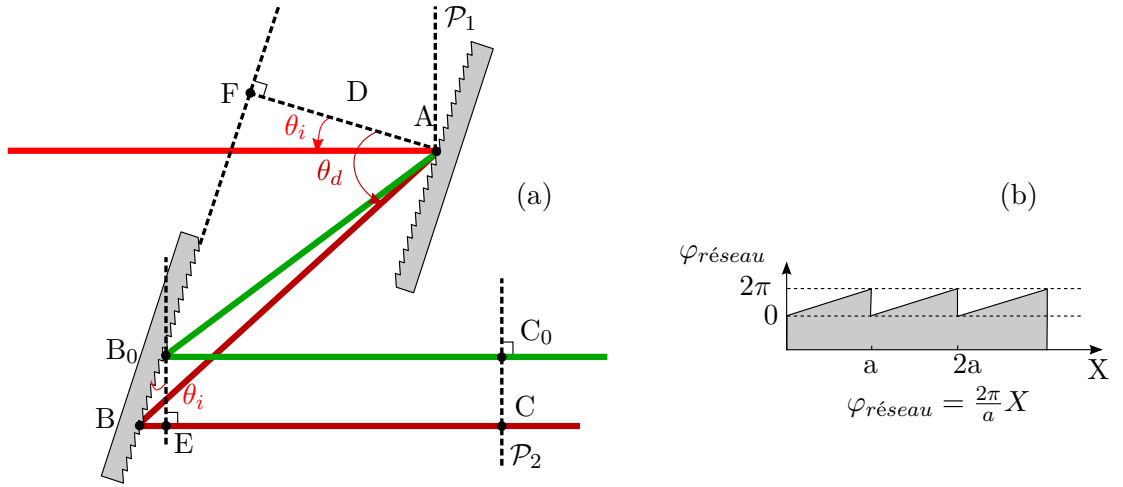


Figure 1.2: (a): Notations utilisées pour le calcul de la fonction de transfert d'un compresseur à réseaux. Le chemin  $(AB_0C_0)$  correspond à une fréquence particulière. (b): Phase ajoutée par un réseau de diffraction.

spectralement constante sur la plage spectrale étudiée. La phase spectrale totale s'écrit comme le double de la phase d'un demi-compresseur comprenant seulement les deux premiers réseaux:

$$\varphi(\omega) = 2(\varphi_{\text{propagation}}(\omega) + \varphi_{\text{réseau}}(\omega)) \quad (1.17)$$

Notons qu'il faut à la fois prendre en compte la phase accumulée au cours de la propagation libre  $\varphi_{\text{propagation}}$  et la phase introduite par le second réseau de diffraction  $\varphi_{\text{réseau}}$ . Commençons par étudier la phase accumulée entre les plans  $\mathcal{P}_1$  et  $\mathcal{P}_2$  (voir Fig. 1.2):

$$\varphi_{\text{propagation}}(\omega) = \frac{\omega}{c}L(\omega) \quad (1.18)$$

avec  $L(\omega) = AB + BC = AB + BE + EC = AB + BE + B_0C_0$ .

Or  $AB = D/\cos \theta_d$  et  $BE = B_0B \sin \theta_i$  où  $D$  est la distance entre les réseaux. De plus  $B_0B = FB - FB_0 = D(\tan \theta_d - \tan \theta_{d0})$ . On en déduit:

$$\varphi_{propagation}(\omega) = \frac{\omega}{c} \left( \frac{D}{\cos \theta_d} + D \sin \theta_i (\tan \theta_d - \tan \theta_{d0}) + B_0C_0 \right) \quad (1.19)$$

On ne s'intéresse pas au terme linéaire en fréquence dans cette phase (phase absolue et décalage temporel de l'impulsion): on peut donc retirer ces termes de la précédente expression, ce qui donne:

$$\varphi_{propagation}(\omega) = D \frac{\omega}{c} \left( \frac{1}{\cos \theta_d} + \sin \theta_i \tan \theta_d \right) \quad (1.20)$$

Le second réseau ajoute une phase moyenne sur la taille du faisceau différente selon la composante spectrale considérée car elles sont réfléchies à différentes positions du réseau. Cette phase s'écrit (Fig. 1.2 (b)):

$$\varphi_{réseau}(\omega) = -\frac{2\pi}{a} B_0B = -\frac{2\pi}{a} D(\tan \theta_d - \tan \theta_{d0}) \quad (1.21)$$

Une fois de plus on retire les termes linéaires en fréquence dans la précédente expression et la phase totale devient:

$$\varphi(\omega) = 2 \left( D \frac{\omega}{c} \left( \frac{1}{\cos \theta_d} + \sin \theta_i \tan \theta_d \right) - \frac{2\pi}{a} D \tan \theta_d \right) \quad (1.22)$$

Or d'après la loi des réseaux, au premier ordre de diffraction:

$$\sin \theta_i + \sin \theta_d = \frac{\lambda}{a} \quad (1.23)$$

Finalement la phase de la fonction de transfert d'un compresseur à réseaux s'écrit très simplement:

$$\varphi(\omega) = 2D \frac{\omega}{c} \cos \theta_d \quad (1.24)$$



Notons qu'on a négligé ici les termes de phases constantes mais un compresseur à réseaux pourrait aussi être utilisé pour ajuster la phase de la porteuse des impulsions en translatant l'un des réseaux dans la direction transverse d'une distance inférieure au pas du réseau. Afin de mettre en évidence les paramètres pertinents permettant de modifier la dispersion introduite par le compresseur, on peut dériver deux fois l'expression de la phase spectrale pour obtenir [30]:

$$\frac{d^2\varphi}{d\omega^2} = \frac{-\lambda^3 D}{\pi c^2 a^2} \left( 1 - \left( \frac{\lambda}{a} - \sin \theta_i \right)^2 \right)^{-\frac{3}{2}} \quad (1.25)$$

Ainsi que:

$$\frac{d^3\varphi}{d\omega^3} = -\frac{d^2\varphi}{d\omega^2} \frac{3\lambda}{2\pi c} \left( 1 + \frac{\lambda}{a} \frac{\frac{\lambda}{a} - \sin \theta_i}{1 - \left( \frac{\lambda}{a} - \sin \theta_i \right)^2} \right) \quad (1.26)$$

La Fig. 1.3 représente le retard de groupe d'un compresseur à réseaux de 300 traits par mm à l'incidence de Littrow<sup>1</sup> à 800 nm pour une distance D=25 mm. A titre de comparaison, un bloc de verre de silice fondue a un rapport  $\varphi^{(3)}(\omega_0)/\varphi^{(2)}(\omega_0) \sim 0.76$  fs à 800 nm, tandis que ce compresseur donne  $\varphi^{(3)}(\omega_0)/\varphi^{(2)}(\omega_0) \sim -1.31$  fs. Un compresseur à réseaux permet de compenser la phase quadratique mais le terme d'ordre 3 est malheureusement de signe positif et s'ajoute à la dispersion naturelle des optiques. Notons qu'on peut réduire le nombre de réseaux nécessaires en insérant un rétro réflecteur au niveau du plan de symétrie: le faisceau est renvoyé sur lui-même, ce qui assure la recombinaison des composantes spectrales.

Il est également possible de produire un terme quadratique de signe positif avec ce type de dispositif, à condition d'insérer un télescope entre les deux premiers réseaux (et les deux derniers) [31]. Dans ce cas on parle d'étireur à réseaux, un élément essentiel pour l'amplification d'impulsions à dérive de fréquence [32].

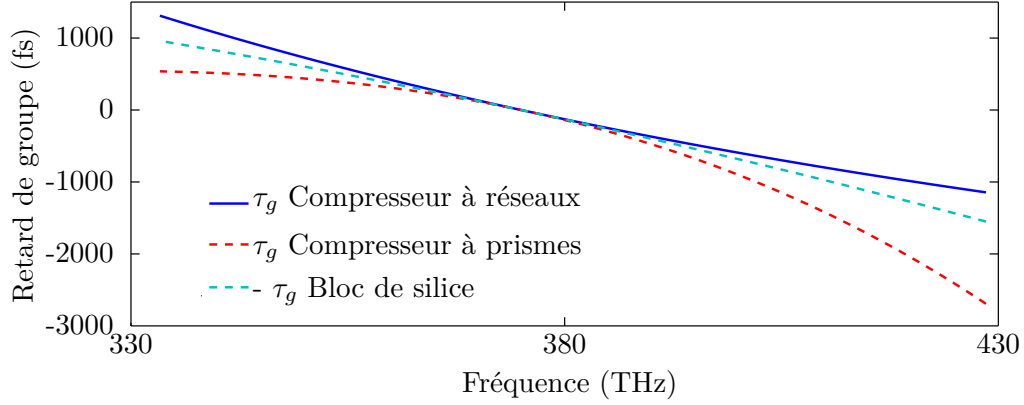


Figure 1.3: Retards de groupe pour un compresseur à réseaux (300 traits / mm,  $D=25\text{mm}$ , incidence de Littrow à 800 nm), un compresseur à prismes (N-SF14, incidence de Brewster à 800 nm, minimum de déviation à 800 nm,  $\lambda_{courte}=700\text{nm}$ ,  $D=40\text{cm}$ ), un bloc de 113 mm de  $\text{SiO}_2$ . Les distances et épaisseurs correspondent à  $\pm 4100 \text{ fs}^2$ .

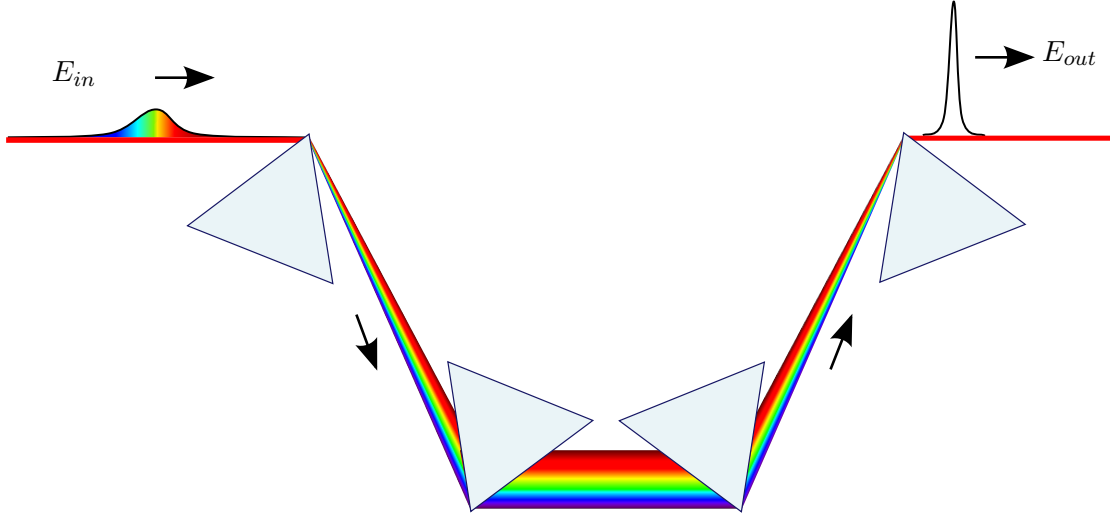


Figure 1.4: Schéma d'un compresseur à prismes.

### Compresseurs à prismes

Le compresseur à prismes, représenté Fig. 1.4, a été proposé assez longtemps après le compresseur à réseaux par Fork *et al.* [33] et Martinez *et al.* [34] en 1984. Ces auteurs décrivent un dispositif comprenant des prismes tous identiques, dont l'angle au sommet est choisi de façon à faire coïncider l'incidence de Brewster (transmission maximale), avec le minimum de déviation, qui rend l'alignement plus robuste. Nous allons reprendre le formalisme élégant qu'ils proposent pour retrouver la fonction de transfert d'un tel

<sup>1</sup>L'incidence de Littrow à une longueur d'onde fixée  $\lambda_0$  est l'angle d'incidence  $\theta_{i,Littrow}$  sur un réseau de diffraction pour lequel le faisceau est diffracté dans la direction incidente, c'est-à-dire  $\theta_d = \theta_{i,Littrow}$ . On en déduit d'après la loi des réseaux (au premier ordre de diffraction):  $\theta_{i,Littrow} = \arcsin \frac{\lambda_0}{2a}$ .

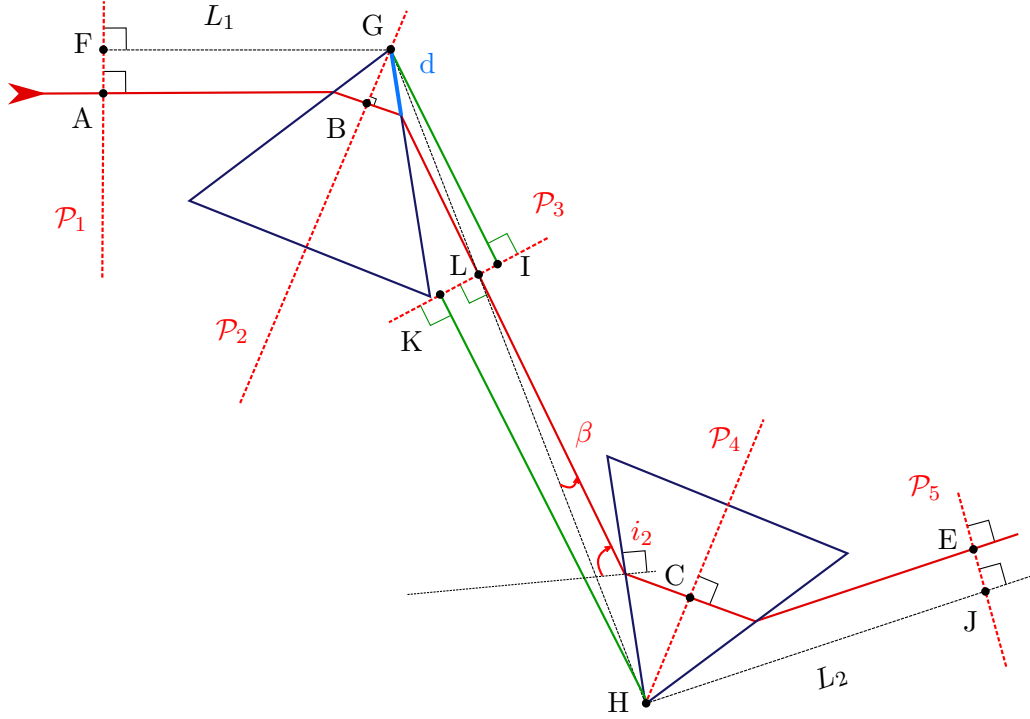


Figure 1.5: Notations pour l'étude du compresseur à prismes.

dispositif. On considère des ondes planes et on néglige la diffraction, notamment en bord de prisme. Le calcul de la fonction de transfert s'appuie presque exclusivement sur le théorème de Malus, qui indique que deux surfaces orthogonales à une famille continue de rayons lumineux de même fréquence optique découpent des chemins optiques égaux. La Fig. 1.5 indique les notations que nous allons utiliser. Par symétrie, la phase totale de la fonction de transfert est le double de la phase induite par un demi-compresseur, c'est-à-dire ne comprenant que deux prismes. Afin d'évaluer le chemin optique  $L_{\mathcal{P}_1-\mathcal{P}_5}$  entre les surface d'onde  $\mathcal{P}_1$  et  $\mathcal{P}_5$ , nous allons utiliser des rayons lumineux fictifs qui traversent une quantité de verre nulle et qui simplifient grandement le calcul. Pour cela, nous allons procéder par étape et considérer les surfaces d'onde intermédiaires  $\mathcal{P}_2$ ,  $\mathcal{P}_3$  et  $\mathcal{P}_4$ . Le chemin optique pour un demi-compresseur s'écrit:

$$L_{\mathcal{P}_1-\mathcal{P}_5} = L_{\mathcal{P}_1-\mathcal{P}_2} + L_{\mathcal{P}_2-\mathcal{P}_3} + L_{\mathcal{P}_3-\mathcal{P}_4} + L_{\mathcal{P}_4-\mathcal{P}_5} \quad (1.27)$$

Commençons par expliciter les termes les plus simples:  $L_{\mathcal{P}_1-\mathcal{P}_2} = L_1$  et  $L_{\mathcal{P}_4-\mathcal{P}_5} = L_2$  sont des chemins fixés par le choix de la positions des surface d'onde et ne dépendent

pas de la longueur d'onde, ils ne participeront donc pas à une dispersion du retard de groupe et nous pouvons donc ne pas en tenir compte. En revanche les termes suivants s'écrivent:

$$L_{\mathcal{P}_2-\mathcal{P}_3} = GI = GL \cos \beta(\omega) \quad L_{\mathcal{P}_3-\mathcal{P}_4} = KH = LH \cos \beta(\omega) \quad (1.28)$$

où  $\beta(\omega)$  est l'angle entre la droite joignant les deux apex (GH) et le rayon lumineux réel de la composante spectrale considérée. Or  $GL + LH = D$  où  $D$  est la distance entre l'apex des deux prismes. La phase totale de la fonction de transfert du dispositif s'écrit donc (en omettant les termes linéaires):

$$\varphi(\omega) = 2D \frac{\omega}{c} \cos \beta(\omega) \quad (1.29)$$

Cette expression est remarquablement simple. L'expression de l'angle  $\beta(\omega)$  l'est moins. En supposant que le rayon lumineux de la plus courte des longueurs d'onde passe par l'apex du second prisme, on peut écrire  $\beta(\omega)$  sous la forme  $\beta = \beta_{courte} + i_{2,courte} - i_2$  où  $i_2$  est l'angle d'incidence sur le second prisme,  $i_{2,courte}$  et  $\beta_{courte}$  les angles correspondant à la longueur d'onde la plus courte. Les lois de Snell-Descartes indiquent:

$$i_2 = \arcsin \left( n \sin \left( A - \arcsin \left( \frac{\sin i}{n} \right) \right) \right) \quad (1.30)$$

où  $i = \arctan n_0$  est l'angle d'incidence sur le premier prisme (Brewster à  $\lambda_0$ ) et  $A = \pi - 2i$  l'angle au sommet des prismes (minimum de déviation à  $\lambda_0$ ). De plus,  $\beta_{courte} = \arcsin(\frac{d}{D} \cos i_{2,courte})$ , où  $d$  est la distance du faisceau de plus courte longueur d'onde avec l'apex du premier prisme, permet de tenir compte de la propagation dans le premier prisme. Notons que cette approche peut se généraliser pour modéliser une succession arbitraire de prismes comme cela est très bien décrit par R. E. Sherriff [35], référence à laquelle on peut se reporter pour les formules analytiques des dispersions du deuxième et troisième ordre. A titre d'exemple, un prisme en N-SF14 en incidence de Brewster et au minimum de déviation à 800 nm, avec  $d=2\text{mm}$ , donne à 800 nm  $\varphi^{(3)}(\omega_0)/\varphi^{(2)}(\omega_0) \sim 4.4$  fs (par dérivation numérique). Pour des calculs numériques, on utilise directement les éq. 1.29 et 1.30. La Fig. 1.3 représente le retard de groupe correspondant à une distance

D=40 cm. Sa courbure importante traduit la présence d'une forte dispersion du troisième ordre: ce type d'arrangement sur-compense la phase du troisième ordre des optiques classiques. Pour obtenir une phase du troisième ordre plus adaptée, on peut se donner des degrés de liberté supplémentaires en augmentant le nombre de prismes [36], en combinant prismes et réseaux [37] ou en utilisant des grismes [38].

### Conclusion

Les compresseurs à prismes ou à réseaux offrent la possibilité d'introduire une phase quadratique négative ajustable. Néanmoins, avec un seul degré de liberté, il n'est pas possible d'ajuster indépendamment la phase du troisième ordre: un compresseur à réseaux ajoute de la phase du troisième ordre positive tandis qu'un compresseur à prismes la sur-compense fortement (Fig. 1.6).

Optiques usuelles	Compresseur à réseaux	Compresseur à prismes
0.8 fs	-1.3 fs	4.4 fs

Figure 1.6: Ordre de grandeur du ratio  $\varphi^{(3)}(\omega_0)/\varphi^{(2)}(\omega_0)$  pour les éléments étudiés.

## 1.4 Un façonneur programmable: la ligne 4f

Les façonneurs programmables fournissent beaucoup plus de degrés de liberté que les compresseurs à réseaux et à prismes pour manipuler la formes des impulsions. On peut distinguer deux approches pour réaliser un tel dispositif. La plus ancienne et la plus répandue s'appelle ligne 4f ou "ligne à dispersion nulle". C'est l'approche que nous employons et elle fait l'objet de cette section. L'autre approche repose sur une interaction acousto-optique longitudinale. Une onde acoustique de forme contrôlée interagit avec les impulsions et permet de manipuler à la fois leur phase et leur amplitude spectrales [39, 40]. Ces filtres dispersifs programmables acousto-optiques (acousto-optic programmable dispersive filters en anglais ou AOPDF) ne sont néanmoins pas optimaux pour notre application. En effet, le temps de propagation relativement long de l'onde acoustique rend le dispositif peu efficace lorsqu'il est employé avec un oscillateur de grande largeur spectrale dont le taux de répétition est de l'ordre de la centaine de MHz [23]. Il est en revanche parfaitement adapté pour une utilisation avec des lasers dont les taux de répétition sont plus faibles [41], jusqu'à quelques centaines de kiloHertz, auquel cas

chaque impulsion voit une nouvelle onde acoustique.

Pour un véritable état de l'art des différentes techniques de façonnages programmables, on peut se reporter aux excellents articles de revue de Weiner [42] et Monmayrant et Chatel [43], au guide d'introduction au façonnage d'impulsions de Monmayrant *et al.* [28] ainsi qu'à la thèse de A. Monmayrant [44]. Les dispositifs de façonnage d'impulsions ultra-brèves sont des générateurs de fonctions à ultra-hautes fréquences, capables de produire des formes arbitraires d'impulsions, dont la durée peut ne compter que quelques oscillations du champ électrique. Comme il n'existe pas de composants électroniques disposant de la bande passante suffisante pour pouvoir manipuler le champ électrique directement dans le domaine temporel, nous sommes contraints d'effectuer le façonnage dans le domaine spectral, en manipulant la phase et / ou l'amplitude spectrale du champ complexe.

### 1.4.1 Principe

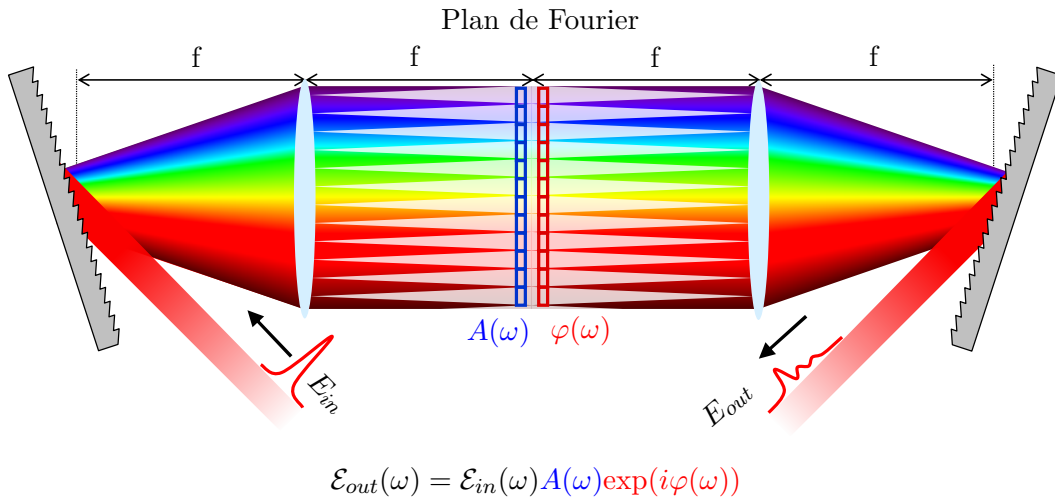


Figure 1.7: Une ligne à dispersion nulle de type 4f, consitutée de 2 réseaux de diffraction et 2 lentilles de focale f.

Pour travailler dans le domaine spectral, ou en d'autres termes, implémenter expérimentalement la transformation de Fourier par rapport au temps, il existe un dispositif, très largement utilisé, dénommé ligne à dispersion nulle, ou ligne 4f. Son principe de fonctionnement est très proche de celui d'un spectromètre dont on aurait remplacé la caméra CCD par un masque. Comme il est indiqué sur le schéma de la Fig. 1.7, un réseau de diffraction sépare angulairement les différentes composantes spectrales du faisceau. Une

lentille de focale  $f$ , placée à une distance  $f$  du réseau, renvoie les différentes composantes dans la même direction et les focalise dans un même plan: le plan de Fourier. Dans ce plan, les différentes composantes spectrales sont séparées et focalisées. En y plaçant un masque d'amplitude on peut contrôler l'énergie de chaque composante spectrale tandis qu'avec un masque de phase, on peut jouer sur les chemins optiques des différentes composantes spectrales et manipuler la phase spectrale. En insérant après le plan de Fourier à nouveau une lentille et un réseau de diffraction distants de  $f$ , on peut recombinaison les différentes composantes. Si le dispositif est parfaitement aligné, en l'absence de masque, le dispositif est un étireur à réseaux en position neutre, d'où sa dénomination de "ligne à dispersion nulle". En pratique, on préfère des optiques réfléchives (miroirs sphériques ou cylindriques) de façon à ne pas introduire de dispersion et à éviter les aberrations chromatiques.

### 1.4.2 Montage expérimental

La Fig. 1.8 représente la géométrie repliée que nous avons implémentée pour notre ligne 4f. Ce choix a été motivé par les recommandations d'Antoine Monmayrant dans sa thèse [28] qui démontre que cette géométrie évite à la fois les aberrations d'excentrement et l'inclinaison des taches focales. Trois éléments caractérisent cette géométrie:

- les faisceaux incident et diffracté par le réseau de diffraction forment un plan orthogonal aux traits du réseau;
- le miroir de repli permet d'assurer une incidence sur l'axe du miroir cylindrique;
- le SLM est de type réfléchif, ce qui conduit à une géométrie repliée de la ligne 4f et facilite grandement l'alignement.

### 1.4.3 Les SLM à cristaux liquides

Il existe de nombreux types de masques programmables que l'on peut insérer dans le plan de Fourier d'une ligne 4f. On peut distinguer les masques à cristaux liquides [45], les modulateurs acousto-optiques transverses [46], les miroirs déformables [47] ou encore les micro-miroirs électromécaniques (micro-electro-mechanical system en anglais ou MEMS) [48]. Pour implémenter notre ligne 4f, nous avons opté pour un masque à

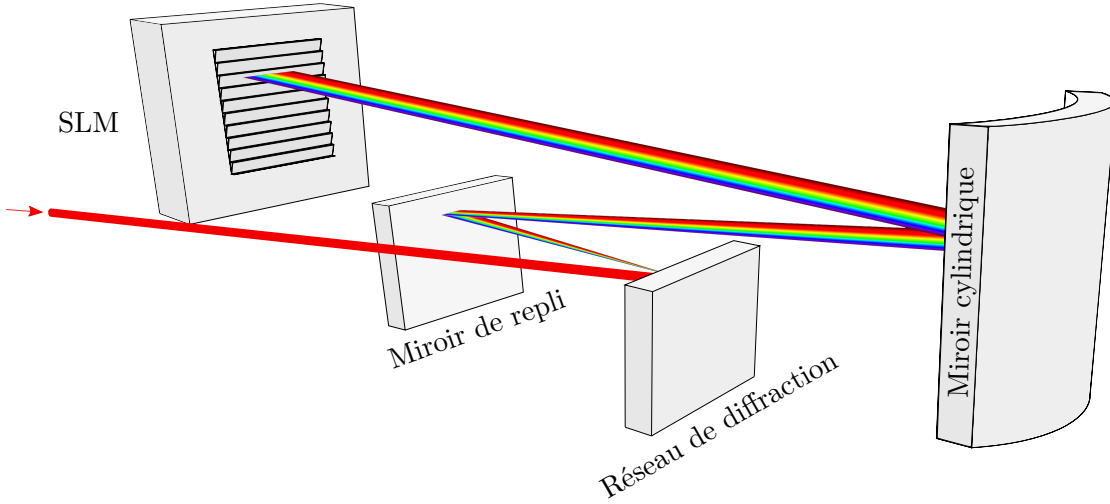


Figure 1.8: Géométrie repliée de ligne 4f implémentée dans notre laboratoire comportant un réseau de diffraction, un miroir de repli, un miroir cylindrique et un SLM 2D. Lorsque le SLM affiche un masque de phase diffractif, un diaphragme ou une paire de lames de rasoir permet de sélectionner l'ordre de diffraction façonné (l'ordre 1) et de bloquer les autres.

cristaux liquides bi-dimensionnel adressé optiquement qui présente l'avantage d'être à la fois compatible avec un oscillateur laser à 75 MHz et ne présente pas d'artefacts liés à la pixelisation.

### Principe

Commençons par décrire succinctement comment un faisceaux lumineux interagit avec un milieu à cristaux liquides en phase nématique [49]. Cette phase correspond à un état intermédiaire de la matière, entre la phase cristalline et la phase liquide, dans lequel de longues molécules sont distribuées sans ordre de position mais en demeurant globalement parallèles les unes aux autres. Cette anisotropie induit de la biréfringence uniaxe qui est à l'origine de la plupart des applications électro-optiques des cristaux liquides. En effet, ces longues molécules portent un moment dipolaire, ce qui permet de contrôler leur orientation globale avec un champ électrique extérieur et donne la possibilité de manipuler la valeur de l'indice de réfraction extraordinaire. En pratique, un champ oscillant est appliqué de façon à limiter les effets de migration des molécules. Notons  $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$  le repère orthogonal où  $\vec{z}$  est la direction de propagation du faisceau lumineux (Fig. 1.9), et intéressons-nous à deux degrés d'orientation extrémaux pour les molécules de cristaux liquides. Tout d'abord si les molécules sont toutes parallèles à  $\vec{z}$  (Fig. 1.9



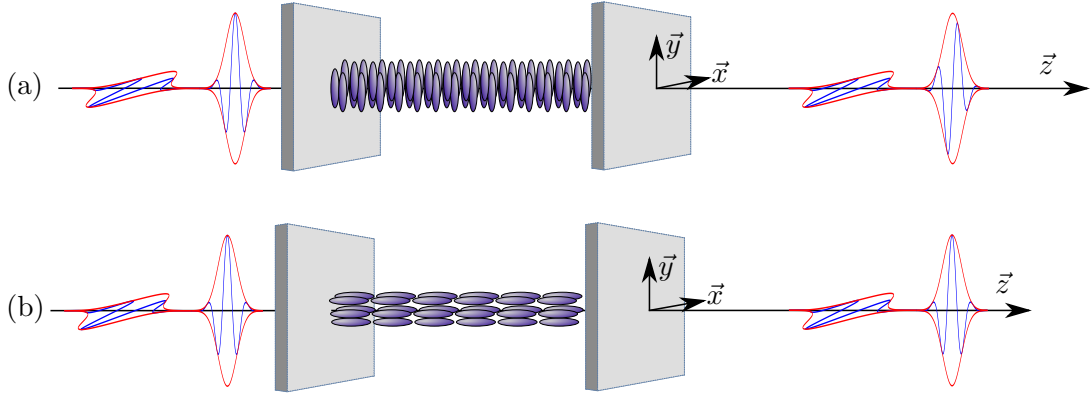


Figure 1.9: Effets des cristaux liquides nématiques parallèles sur les polarisations  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$ .

- (a) Les molécules sont globalement **orthogonales** à la direction de propagation  $\vec{z}$ .
- (b) Les molécules sont globalement **parallèles** à la direction de propagation  $\vec{z}$ .

(b)) alors, du point de vue de l'onde incidente, les polarisations  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$  voient un même milieu isotrope, comme lorsqu'un faisceau se propage selon l'axe optique d'un milieu biréfringent uniaxe. Tandis que si les molécules sont toutes alignées sur  $\vec{y}$  (Fig. 1.9 (a)), du point de vue de la polarisation  $\vec{x}$  le milieu est inchangé (il a le même indice de réfraction) et pour la polarisation  $\vec{y}$  le milieu est radicalement différent: la biréfringence est maximale. Il est possible de passer d'une situation extrême à l'autre, c'est-à-dire de modifier continument l'indice de réfraction pour la polarisation  $\vec{y}$ , et donc la phase accumulée pour cette composante du champ, tandis que la composante  $\vec{x}$  reste inchangée. Finalement, ce type de SLM à cristaux liquides correspond à un milieu biréfringent dont les axes neutres sont fixés, et dont l'indice extraordinaire est ajustable. Typiquement, l'amplitude de modulation peut atteindre quelques  $\pi$ . Les SLM unidimensionnels sont les plus répandus, ils permettent:

- le façonnage purement en phase si le dispositif compte un unique SLM avec une polarisation incidente linéaire alignée sur l'axe neutre réglable du SLM;
- le façonnage en phase et en amplitude si le dispositif compte deux SLM orthogonaux avec une polarisation incidente linéaire à  $45^\circ$  des axes neutres du SLM et en sortie un polariseur linéaire aligné sur la polarisation incidente;
- le façonnage en phase et en polarisation si le dispositif compte deux SLM orthogonaux avec une polarisation incidente quelconque.

### Effet de la pixelisation

Un masque à cristaux liquides unidimensionnel est une juxtaposition de cellules ou pixels de cristaux liquides, introduisant une phase constante sur la taille du pixel (typiquement d'une centaine de  $\mu\text{m}$ ), séparés par des interstices (typiquement de quelques  $\mu\text{m}$ ) de faible transmission. Cette structure pixelisée est à l'origine de répliques temporelles [43, 45, 50–53] que nous allons décrire succinctement. On peut distinguer trois sources de répliques liées à la pixelisation du masque:

- les répliques liées aux interstices;
- les répliques liées à l'échantillonnage du masque;
- les répliques liées aux discontinuités imparfaites de la phase lorsqu'un repliement de celle-ci dans l'intervalle  $[0, 2\pi]$  est nécessaire.

**Effet des interstices** Les interstices sont équivalents à des pixels quasi-régulièrement espacés dans le domaine spectral d'un pas  $\Delta\Omega$ , ce qui se traduit dans le domaine temporel par des répliques centrées sur le retard nul et distantes de  $\frac{2\pi}{\Delta\Omega}$ . Il est possible de s'en affranchir en programmant des impulsions de phases opposées sur le reste du masque de façon à interférer destructivement avec ces répliques [50]. En pratique, les interstices sont régulièrement espacés dans l'espace mais pas en fréquence, ce qui est à l'origine d'un étalement temporel de ces répliques.

**Effet de l'échantillonnage** La deuxième origine des répliques est l'échantillonnage de la phase, c'est-à-dire le fait que la phase appliquée n'est pas une fonction continue de la fréquence optique mais une fonction en escalier. Supposons pour simplifier que le spectre du champ incident  $\mathcal{E}_{in}$  est constant sur l'extension d'un pixel et les impulsions incidentes sont limitées par transformée de Fourier. Supposons de plus que les pixels sont régulièrement espacés en espace d'une distance  $\Delta x$  mais aussi en fréquence optique. On note  $\Delta\Omega$  la séparation en pulsation optique entre deux pixels adjacents. Le champ incident peut alors se mettre sous la forme [53]:

$$\mathcal{E}_{in}(\omega) = \sum_{n=-N/2}^{N/2-1} B_n \text{rect}\left(\frac{\omega - \omega_n}{\Delta\Omega}\right) \quad (1.31)$$

où  $n$  indice les  $N$  pixels du masque et  $B_n$  est l'amplitude spectrale du champ incident à la pulsation optique  $\omega_n$ . On définit la fonction  $\text{rect}$  de la façon suivante:

$$\text{rect}(\omega) = \begin{cases} 1, & |\omega| \leq 1/2 \\ 0, & |\omega| > 1/2 \end{cases} \quad (1.32)$$

On rappelle que sa transformée de Fourier donne:

$$\mathcal{F}[\text{rect}(\omega)] = \frac{1}{2\pi} \text{sinc} \frac{t}{2} \quad (1.33)$$

où  $\text{sinc}(x) = \frac{\sin x}{x}$ .

En négligeant les interstices du masque, le champ en sortie de dispositif peut s'écrire [53]:

$$E_{out}(t) \propto \underbrace{\exp\left(-\frac{\delta\Omega^2}{4}t^2\right)}_1 \underbrace{\text{sinc}\left(\frac{\Delta\Omega}{2}t\right)}_2 \underbrace{\sum_{n=-N/2}^{N/2-1} A_n B_n \exp[i(-\omega_n t + \phi_n)]}_3 \quad (1.34)$$

où  $\delta\Omega$  est la résolution de la paire réseau-lentille ( $\delta\Omega = \delta x \frac{\Delta\Omega}{\Delta x}$ , où  $\delta x$  est la taille de la tache focale, c'est-à-dire la largeur à 1/e de l'intensité supposée de profil gaussien),  $A_n$  et  $\phi_n$  sont l'amplitude et la phase spectrales de la modulation appliquée. Cette expression met en évidence 3 termes.

1. Le premier terme rend compte de la résolution spectrale finie du dispositif.
2. Le second terme est la conséquence directe de la forme rectangulaire des pixels.  
Le produit des deux premiers termes forme la fenêtre temporelle dans laquelle il est possible de produire des impulsions. Il apparaît donc que la largeur temporelle de cette fenêtre dépend à la fois de la résolution optique du système réseau-lentille et de la taille des pixels.
3. Le troisième terme, périodique de période  $\frac{2\pi}{\Delta\Omega}$ , est à l'origine de répliques temporelles. Notons que le fait que les pixels ne soient pas parfaitement régulièrement espacés dans le domaine spectral a pour conséquence que ces répliques ont en plus des termes de phase d'ordres supérieurs [53], qui ne sont pas modélisés ici.

**Effet de bord** Les SLM utilisés en pratique ont une excursion de phase qui n'est que légèrement supérieure à  $2\pi$ . Pour appliquer une phase spectrale supérieure à  $2\pi$ , on a donc recours au repliement de la phase dans l'intervalle  $[0, 2\pi]$ , à l'instar d'une lentille de Fresnel. Cette approche fonctionnerait parfaitement si les bords des pixels étaient parfaitement abrupts, puisque la phase est effectivement définie dans cet intervalle. En pratique, cette approche comporte néanmoins des inconvénients. Considérons par exemple le cas d'un retard pur, associé à une phase spectrale  $\varphi(\omega) = \omega\tau$ . La phase repliée dans l'intervalle  $[0, 2\pi]$  est donc une fonction en dents de scie, avec un saut de phase très abrupt lorsque la phase passe brutalement de  $2\pi$  à 0. Si les bords des pixels du SLM ne sont pas parfaitement abrupts, la phase appliquée en réalité est alors  $\varphi_{réelle}(\omega) = \omega\tau + \varphi_{erreur}(\omega)$  où  $\varphi_{erreur}(\omega)$  est l'erreur de phase introduite au niveau des sauts de phase. Cela signifie que  $\varphi_{erreur}(\omega)$  est une fonction périodique de période  $\frac{2\pi}{\tau}$  qui se traduira dans le domaine temporel par des répliques distantes de  $\tau$ . Remarquons que l'importance de ce type de répliques est faible dans le cas d'un masque pixelisé dans la mesure où les transitions d'un pixel à l'autre sont relativement abruptes.

L'utilisation d'un façonneur d'impulsions de type 4f avec un masque pixelisé implique donc l'apparition de répliques temporelles dont l'origine est double. La première est purement liée à la nature pixelisé du masque (présence d'interstices et échantillonnage de la phase) tandis que la seconde provient du repliement imparfait de la phase dans l'intervalle  $[0, 2\pi]$  [53]. Remarquons qu'un choix judicieux des optiques de la ligne 4f permet de minimiser l'importance de ces répliques [44], notamment en ajustant la taille de la fenêtre temporelle de façonnage.

### La valve optique

Afin d'éviter autant que possible les artefacts liés à la pixelisation nous avons opté pour un SLM 2D à cristaux liquides adressés optiquement, aussi appelé valve optique. Les valves optiques ont été initialement développées au Centre de Recherche de Thales [55] ainsi que par Hamamatsu, qui propose un dispositif intégrant une source laser de contrôle. Nous utilisons le modèle X8267 développé par Hamamatsu intégrant une diode laser (Fig 1.11). Le schéma de principe de l'adressage optique est représenté

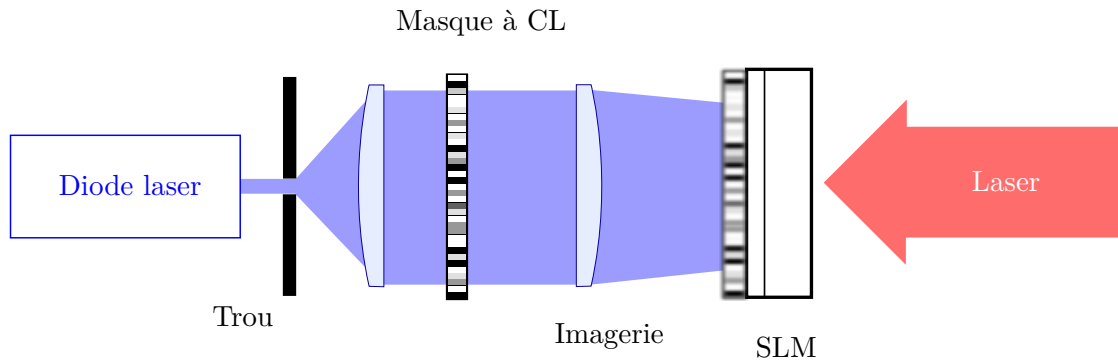


Figure 1.10: Schéma de principe d'un SLM adressé optiquement (adapté de [54]). Un masque pixelisé à cristaux liquides (CL) en transmission est imagé sur un matériau photoconducteur.

Fig. 1.10 ainsi que Fig. 1.12 qui détaille plus particulièrement le fonctionnement du SLM. L'avantage de ce type de dispositif est d'offrir la même capacité de contrôle par ordinateur que celle des systèmes à cristaux liquides classiques mais en s'affranchissant de la pixelisation. Une couche homogène de cristaux liquides est placée entre des électrodes transparentes mais un substrat photoconducteur est intercalé d'un côté (Fig. 1.12). De cette façon, il est possible de contrôler localement le champ appliqué aux cristaux liquides en modifiant l'éclairement incident sur le photoconducteur. Pour cela, une diode laser éclaire un écran à cristaux liquides classique pixelisé (LCD) qui contrôle l'intensité spatiale incidente sur le photoconducteur. Plus précisément, le plan du LCD est imagé sur le photoconducteur par un système optique dont la résolution spatiale est volontairement détériorée de sorte à lisser le masque d'amplitude pixelisé produit par le LCD. Par conséquent, l'intensité incidente sur le matériau photoconducteur est une version lissée du masque pixelisé produit par le LCD et ne comporte ni interstices, ni discontinuités. Notons que le matériau photoconducteur doit être protégé du faisceau de lecture afin de ne pas modifier le masque de phase appliqué. A cet effet, un miroir diélectrique bloque le laser de lecture (Fig. 1.12). Néanmoins, il n'est pas possible d'employer de trop fortes intensités de lecture au risque d'effacer le masque de phase. Typiquement, on ne dépasse pas quelques centaines de  $\text{mW par cm}^2$  avec un oscillateur à 800 nm et un taux de répétition de l'ordre de 75 MHz.

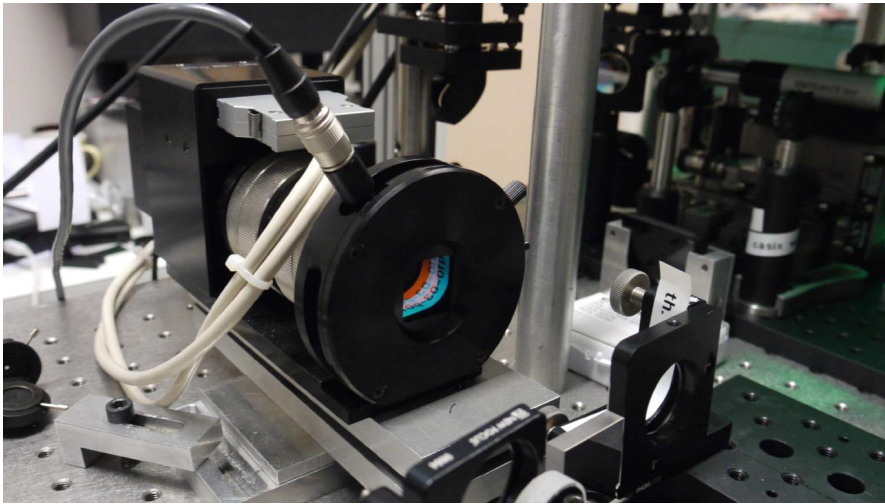


Figure 1.11: Photographie du SLM Hamamatsu X8267 utilisé dans notre ligne 4f.

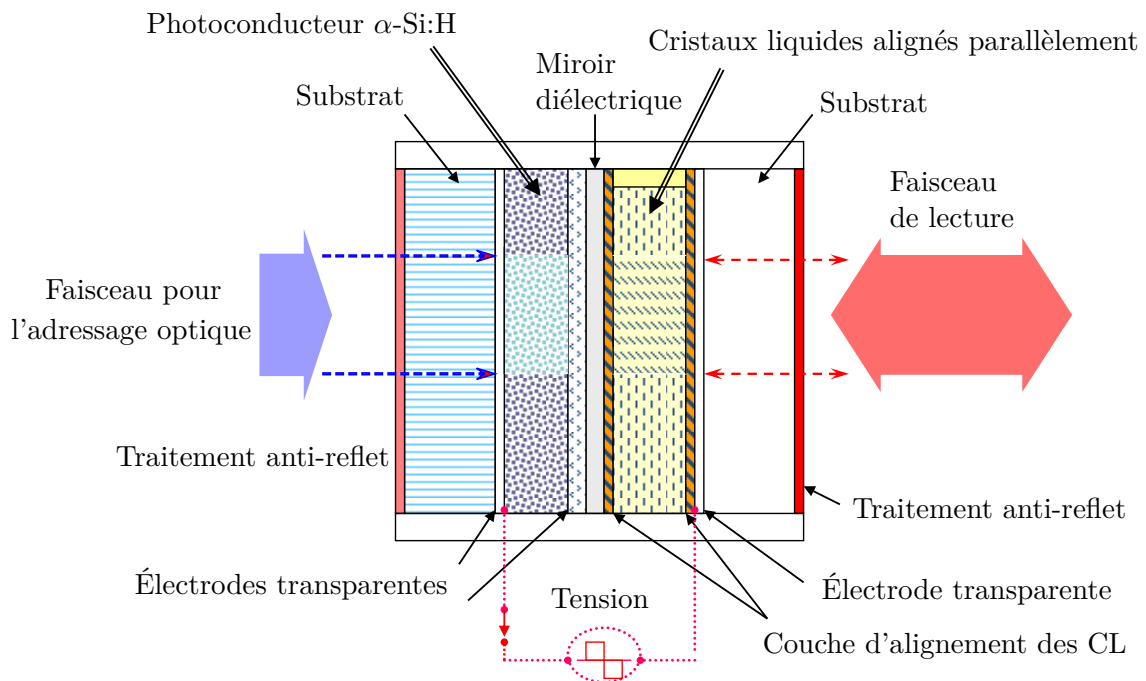


Figure 1.12: Schéma de principe d'un SLM adressé optiquement, adapté à partir du schéma figurant dans la notice d'utilisation du modèle X8267 (Hamamatsu).

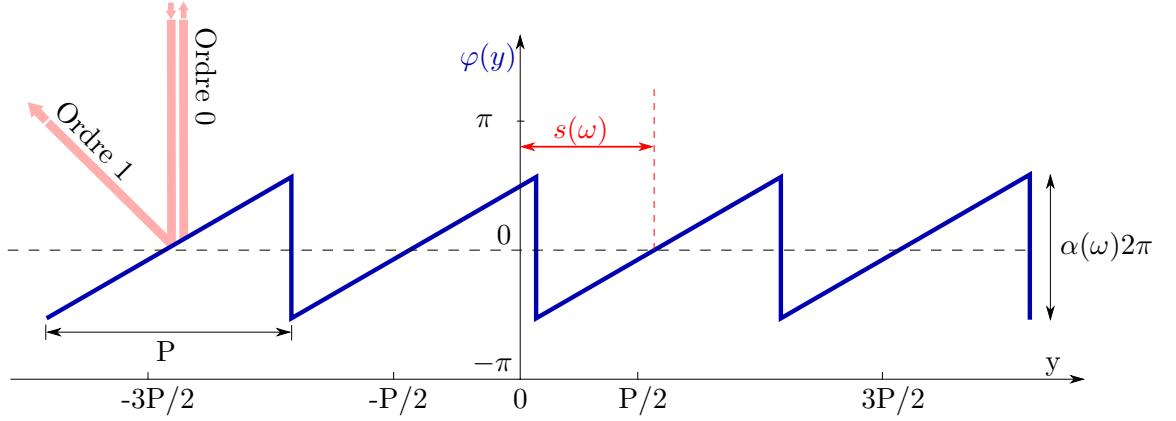


Figure 1.13: Réseau de diffraction blazé vu par une composante spectrale  $\omega$ , inscrit dans la dimension verticale du SLM 2D. Le paramètre  $\alpha(\omega)$  permet de régler l'amplitude diffractée dans l'ordre 1 et  $s(\omega)$  sa phase.

#### 1.4.4 Façonner en amplitude et en phase avec un SLM 2D

Dorrer *et al.* ont été les premiers à utiliser une valve optique unidimensionnelle dans une ligne 4f pour réaliser du façonnage d'impulsions non pixelisé [54]. Quelques années plus tard, le groupe de K.A. Nelson a validé l'utilisation d'une valve optique 2D développée par Hamamatsu pour réaliser diverses expériences de façonnage d'impulsions [56–59]. Puis en 2005, Vaughan *et al.* ont proposé un schéma ingénieux de façonnage exploitant les deux dimensions d'un SLM 2D adressé optiquement pour réaliser un façonnage à la fois en amplitude et en phase spectrale avec un masque de phase diffractif [60]. Nous avons implémenté cette approche et nous allons donc en exposer le principe et étudier ses limites.

##### Principe

La méthode de façonnage proposée par Vaughan *et al.* consiste à utiliser un SLM 2D adressé optiquement combiné avec une optique cylindrique dans une ligne 4f. De cette manière, dans le plan de Fourier, chaque composante spectrale est focalisée dans la dimension horizontale mais étalée dans la dimension verticale. On utilise alors le SLM 2D pour appliquer à chaque composante spectrale un réseau de diffraction blazé dans la direction verticale  $\vec{y}$  (Fig. 1.13). Le choix des paramètres de ce réseau de diffraction permet de modifier à la fois la phase de la composante considérée mais aussi son amplitude.

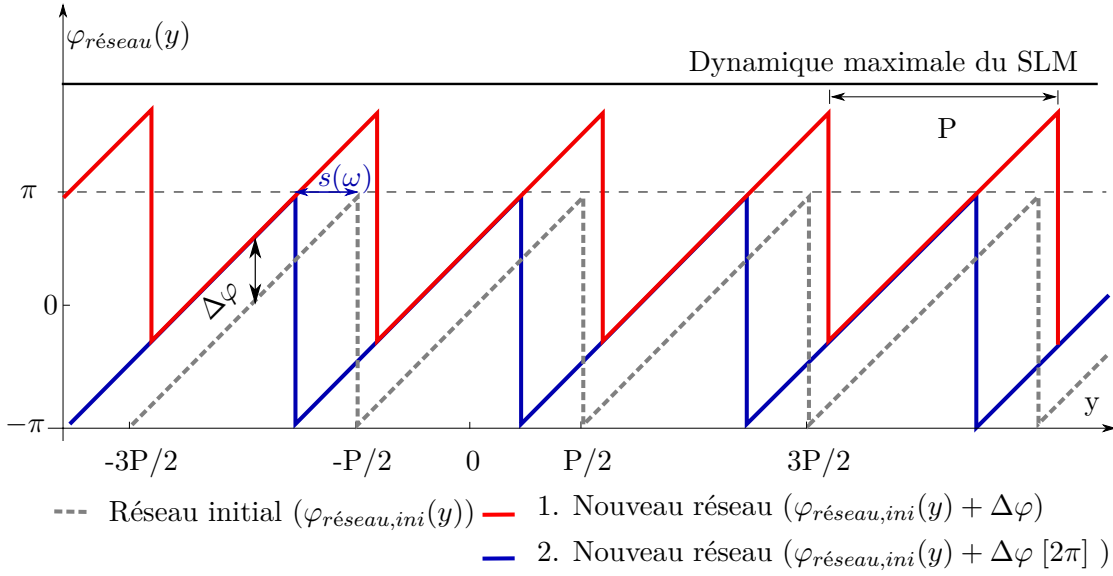


Figure 1.14: Représentation schématique des deux stratégies possibles pour ajouter une phase  $\Delta\varphi$  à une composante spectrale par l'intermédiaire d'un réseau blazé de pas  $P$  (courbe grise). La première consiste à simplement ajouter la quantité  $\Delta\varphi$  au réseau de phase (courbe rouge) tandis que la deuxième consiste à replier le réseau de phase obtenu par ajout de  $\Delta\varphi$  entre  $-\pi$  et  $\pi$ , ce qui revient à traduire le réseau.

On peut distinguer deux approches pour ajouter une phase  $\Delta\varphi$  à un faisceau diffracté par un réseau de phase. La première consiste à simplement ajouter la quantité de phase  $\Delta\varphi$  au réseau de phase, comme cela est représenté par la courbe rouge de la Fig. 1.14. Cette approche est limitée par la dynamique du SLM qui est à peine plus grande que  $2\pi$  et ne permet donc pas de grands déphasages. La deuxième approche repose sur le repliement de la phase entre  $-\pi$  et  $\pi$  du réseau de diffraction obtenu par ajout de la quantité  $\Delta\varphi$  au réseau initial. On note  $[2\pi]$  cette opération dans la suite. Remarquons que le réseau obtenu par repliement (courbe bleue de la Fig. 1.14) est une version traduite du réseau initial. En d'autres termes, on peut ajouter un déphasage  $\Delta\varphi$  quelconque par l'intermédiaire d'un réseau de diffraction blazé de pas  $P$  en le traduisant d'une quantité  $P(\Delta\varphi [2\pi])/(2\pi)$ .

Pour changer l'amplitude d'une composante spectrale, il suffit d'adapter l'amplitude  $\alpha(\omega)2\pi$  du réseau blazé de façon à contrôler son efficacité de diffraction dans l'ordre 1. Intéressons-nous à deux cas extrêmes. Une amplitude de réseau nul ( $\alpha(\omega) = 0$ ) correspond à un miroir parfait et toute l'énergie est réfléchiée dans l'ordre 0 tandis qu'une amplitude de  $2\pi$  ( $\alpha(\omega) = 1$ ) correspond à un réseau de diffraction parfait et diffractera



toute l'énergie de la composante spectrale dans l'ordre 1. Faire varier continument la valeur de l'amplitude du réseau de diffraction entre 0 et  $2\pi$  permet donc de contrôler continument l'amplitude de la composante spectrale diffractée dans l'ordre 1. Notons qu'on place un diaphragme ou une paire de lames de rasoir après la ligne 4f de façon à bloquer tous les ordres diffractés par le SLM, excepté l'ordre 1. Il s'agit d'un point essentiel car, comme nous le verrons par la suite, ces ordres correspondent à des répliques qu'on peut ici facilement bloquer par un filtrage spatial du fait de la dispersion angulaire entre les différents ordres.

### Description théorique

Nous allons maintenant décrire plus précisément la diffraction d'une composante spectrale  $\omega$  par un réseau blazé d'amplitude  $2\pi\alpha(\omega)$  et translaté d'une quantité  $s(\omega)$  dans la direction verticale. Pour cela, nous reprenons les notations de Frumker *et al.* [61] pour écrire la transmission du masque proposé:

$$T(y, \omega) = \left[ \exp\left(-i\frac{2\pi\alpha(\omega)}{P}y\right) \text{rect}\left(\frac{y}{P}\right) \right] \otimes_y \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(y - nP - s(\omega)) \quad (1.35)$$

où  $\otimes_y$  est la convolution par rapport à la variable  $y$ ,  $\delta$  est la distribution de Dirac,  $P$  le pas du réseau,  $2\pi\alpha(\omega)$  l'amplitude du réseau blazé ( $\alpha(\omega) \in [0, 1]$ ) et  $s(\omega)$  le décalage du réseau dans la direction verticale. La transformée de Fourier du masque par rapport à  $y$  donne:

$$\tilde{T}(k_y, \omega) \propto \left[ \text{sinc}\left(k_y \frac{P}{2}\right) \otimes_{k_y} \delta\left(k_y - \frac{2\pi\alpha(\omega)}{P}\right) \right] \exp(is(\omega)k_y) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(k_y - n2\pi/P) \quad (1.36)$$

où  $k_y$  est la variable conjuguée de  $y$ ,  $\otimes_{k_y}$  est la convolution par rapport à la variable  $k_y$ . On modélise l'extension finie du faisceau selon la dimension verticale au niveau du masque par la fonction  $A(y/D)$  (typiquement une gaussienne) [61]. De plus, nous nous intéressons aux valeurs du champ après quelques mètres de propagation libre après la ligne 4f (dans la dimension verticale le champ ne subit que des réflexions spéculaires). On peut donc supposer que l'on se situe en champ lointain (approximation de Fraunhofer

[62]) de façon à écrire le champ après la ligne 4f comme la transformée du champ juste après le masque :

$$\tilde{\mathcal{E}}(k_y, \omega) \propto \tilde{T}(k_y, \omega) \otimes_{k_y} \tilde{A}\left(\frac{k_y}{1/D}\right) \quad (1.37)$$

On s'intéresse à la forme du champ électrique dans l'ordre 1 de diffraction, ce qui correspond au terme  $n=1$  de la série de Fourier de l'éq. 1.36. On en déduit le champ diffracté dans l'ordre 1 après le façonneur d'impulsions:

$$\tilde{\mathcal{E}}(k_y, \omega) \propto \left\{ \text{sinc} \left[ \left( k_y - \frac{2\pi\alpha(\omega)}{P} \right) \frac{P}{2} \right] \exp(i s(\omega) k_y) \delta(k_y - 2\pi/P) \right\} \otimes_{k_y} \tilde{A}\left(\frac{k_y}{1/D}\right) \quad (1.38)$$

Ce qui donne:

$$\tilde{\mathcal{E}}(k_y, \omega) \propto \text{sinc}[\pi(1 - \alpha(\omega))] \exp\left(i \frac{2\pi s(\omega)}{P}\right) \left\{ \delta(k_y - 2\pi/P) \otimes_{k_y} \tilde{A}\left(\frac{k_y}{1/D}\right) \right\} \quad (1.39)$$

On obtient finalement l'expression du champ diffracté dans l'ordre 1 après le façonneur d'impulsions:

$$\tilde{\mathcal{E}}(k_y, \omega) \propto \underbrace{\text{sinc}[\pi(1 - \alpha(\omega))]}_{\text{amplitude}} \exp\left(i \frac{2\pi s(\omega)}{P}\right) \underbrace{\tilde{A}\left(\frac{k_y - 2\pi/P}{1/D}\right)}_{\text{phase}} \quad (1.40)$$

Cette expression confirme qu'il est possible de contrôler l'amplitude spectrale par l'intermédiaire du paramètre  $\alpha(\omega)$  et la phase par le décalage  $s(\omega)$  (Fig.1.13). La Fig.1.15 montre un masque de phase diffractif correspondant à la phase spectrale représentée en rouge sur la même figure. Notons que la phase spectrale appliquée est directement proportionnelle au décalage  $s(\omega)$  des réseaux blazés et par conséquent on peut identifier la forme de la phase spectrale appliquée en suivant les lignes de phase constante sur le masque.

De plus, contrairement à la méthode classique du repliement de la phase entre 0 et  $2\pi$ , cette approche ne nécessite pas de dynamique minimale pour le SLM. En effet, on peut introduire un déphasage quelconque avec un décalage approprié du réseau de diffraction et une dynamique limitée du SLM n'aura d'impact que sur l'efficacité de diffraction des réseaux blazés. Notons que l'énergie qui n'est pas envoyée dans le premier ordre de diffraction se retrouve dans les autres ordres de diffraction. Il est donc nécessaire de

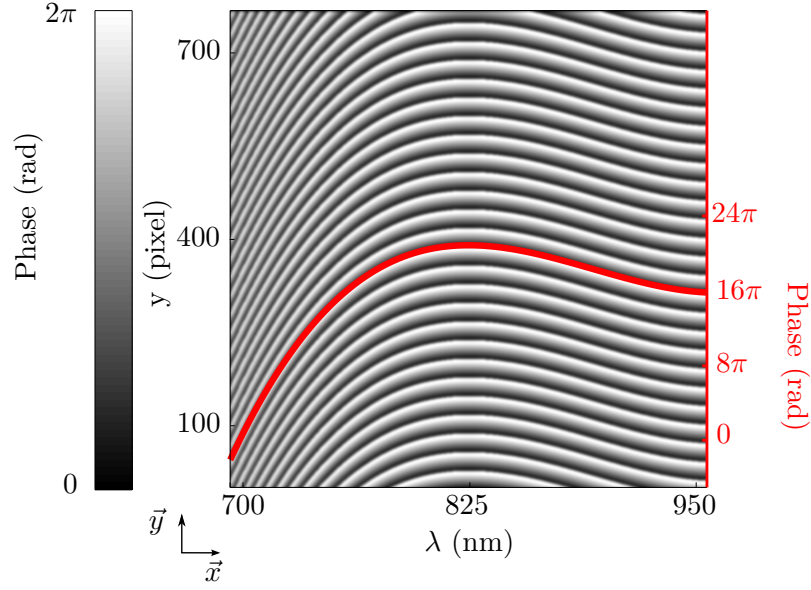


Figure 1.15: Masque de phase 2D placé dans le plan de Fourier d’une ligne 4f permettant un façonnage en phase et en amplitude spectrales. Les phases relatives entre les réseaux induisent la phase spectrale souhaitée (en rouge) et l’amplitude des réseaux l’amplitude spectrale (ici maximale car l’amplitude des réseaux est de  $2\pi$ :  $\alpha(\omega) = 1$ ).

placer un diaphragme ou une paire de lames de rasoir après le façonneur afin de filtrer ces ordres indésirables.

**Erreur de calibration et effet du lissage** D’un point de vue pratique, deux éléments peuvent empêcher d’appliquer la phase souhaitée:

- l’adressage optique du SLM lisse le masque envoyé et donc le réseau blazé;
- la loi de calibration en phase du SLM peut être mal connue.

Pour prendre en compte ces deux effets, on note  $f_\alpha(y, \omega)$  la phase réellement appliquée au niveau du masque. Dans ce cas, l’éq. 1.35 devient:

$$T(y, \omega) = \left[ \exp(i f_\alpha(y, \omega)) \text{rect}\left(\frac{y}{P}\right) \right] \otimes \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(y - nP - s(\omega)) \quad (1.41)$$

Notons que cette approche ne rend pas compte du lissage selon la dimension horizontale ( $x$  ou  $\omega$ ) du masque. Dans le cas optimal,  $f_\alpha(y, \omega) = -\frac{2\pi\alpha(\omega)}{P}y$ . On suppose donc que le lissage dû à l’adressage optique du SLM modifie la forme de cette fonction ou bien que la loi de calibration en phase est mal connue ce qui provoque un écart entre la phase

souhaitée et la phase réellement appliquée. La transformée de Fourier du masque donne dans ce cas:

$$\tilde{T}(k_y, \omega) \propto \underbrace{\left[ \text{sinc}\left(\frac{k_y P}{2}\right) \otimes \mathcal{F}^{-1}[\exp(if_\alpha(y, \omega))](k_y) \right]}_{B_\alpha(k_y, \omega)} \exp(is(\omega)k_y) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(k_y - n2\pi/P) \quad (1.42)$$

En ne gardant que le terme  $n=1$  correspondant au premier ordre de diffraction du réseau, on obtient:

$$\tilde{T}(k_y, \omega) \propto B_\alpha(2\pi/P, \omega) \exp\left(i \frac{2\pi s(\omega)}{P}\right) \delta(k_y - 2\pi/P) \quad (1.43)$$

Le champ en sortie du façonneur, diffracté dans l'ordre 1 s'écrit donc:

$$\tilde{\mathcal{E}}(k_y, \omega) \propto B_\alpha(2\pi/P, \omega) \underbrace{\exp\left(i \frac{2\pi s(\omega)}{P}\right)}_{phase} \tilde{A}\left(\frac{k_y - 2\pi/P}{1/D}\right) \quad (1.44)$$

Trois éléments ressortent de cette expression. Le premier est que malgré une loi de calibration en phase du SLM erronée, il est possible de parfaitement contrôler la phase ajoutée, à condition de maîtriser le décalage des réseaux  $s(\omega)$ .

Le deuxième élément est qu'une erreur de calibration en phase du SLM et l'effet de l'adressage optique ont pour conséquence l'apparition d'un facteur *a priori* complexe  $B_\alpha(2\pi/P, \omega)$  dont l'impact est double. Il ajoute une phase spectrale additionnelle et il déforme le spectre. Notons  $\Phi_\alpha(\omega)$  la phase de ce terme. A  $\alpha$  fixé, il suffit d'opérer une mesure précise de la phase spectrale initiale de la fonction de transfert du dispositif (par interférométrie spectrale par exemple [63–66]) sans décalage des réseaux blazés ( $s(\omega) = 0$ ) afin de mesurer  $\Phi_\alpha(\omega)$ . Ensuite on peut utiliser le décalage des réseaux de sorte à compenser cette phase. En d'autres termes, cette approche permet en une mesure de la phase spectrale initiale du dispositif de compenser l'artefact de phase introduit par la mauvaise calibration.

Enfin, remarquons qu'une erreur de phase peut coupler le façonnage en amplitude et le façonnage en phase. En effet, modifier l'amplitude des réseaux de diffraction avec le

paramètre  $\alpha(\omega)$  peut *a priori* aussi modifier la phase spectrale  $\Phi_\alpha(\omega)$  auquel cas il sera nécessaire de corriger la phase spectrale après application d'un masque d'amplitude. Il est donc important de bien connaître la loi de calibration du SLM lorsqu'on souhaite réaliser à la fois du façonnage en phase et en amplitude afin de découpler au maximum ces deux aspects.

Intéressons-nous plus précisément à l'impact de l'adressage optique sur le facteur  $B_\alpha(2\pi/P, \omega)$ . Pour cela, supposons la loi de calibration en phase du SLM parfaitement connue. Si on suppose la résolution de l'adressage optique relativement homogène sur la zone utilisée du SLM, on peut supposer que l'amplitude  $|B_\alpha(2\pi/P, \omega)|$  est faiblement variable sur le support du spectre. On cherche donc à déterminer si l'adressage optique introduit à lui seul une phase spectrale. En d'autres termes, il s'agit de déterminer si le lissage du masque de phase est à l'origine d'une partie imaginaire pour le terme  $B_\alpha(2\pi/P, \omega) = \text{sinc}\left(\frac{k_y P}{2}\right) \otimes \mathcal{F}^{-1}[\exp(if_\alpha(y, \omega))](k_y)$ . Pour avoir  $B_\alpha(2\pi/P, \omega)$  réel, il suffit d'avoir  $\mathcal{F}^{-1}[\exp(if_\alpha(y, \omega))](k_y)$  réel, ou plus simplement que le terme  $\exp(if_\alpha(y, \omega))$  vérifie la symétrie Hermitienne:

$$\exp(if_\alpha(y, \omega)) = [\exp(if_\alpha(-y, \omega))]^* = [\exp(-if_\alpha(-y, \omega))] \quad (1.45)$$

Il suffit donc que  $f_\alpha(y, \omega)$  soit une fonction de  $y$  antisymétrique pour que l'adressage optique n'introduise pas de phase spectrale. Or, si on suppose la loi de calibration en phase parfaite, la phase produite  $f_\alpha(y, \omega)$  peut être modélisée comme la convolution entre une fonction de lissage  $g$  et une fonction antisymétrique  $h$  correspondant au réseau blazé idéal (Fig. 1.16). Il suffit donc que la fonction de lissage  $g$  soit symétrique<sup>2</sup> pour que  $f_\alpha(y, \omega)$  soit antisymétrique (pour  $y$ ). Cette hypothèse est parfaitement vraisemblable pour une fonction de lissage optique. On peut donc supposer que si la loi de calibration est correctement connue, l'impact d'un masque d'amplitude ( $\alpha(\omega)$ ) sur la phase spectrale est très faible.

Nous allons maintenant illustrer la capacité du SLM à auto-compenser la phase initiale

<sup>2</sup>Le produit de convolution d'une fonction symétrique  $f$  par une fonction antisymétrique  $g$  est antisymétrique. En effet:

$$[f \otimes g](-y) = \int f(y')g(-y - y')dy' = \int f(-y')g(-(y - y'))dy' = -[f \otimes g](y) \quad (1.46)$$

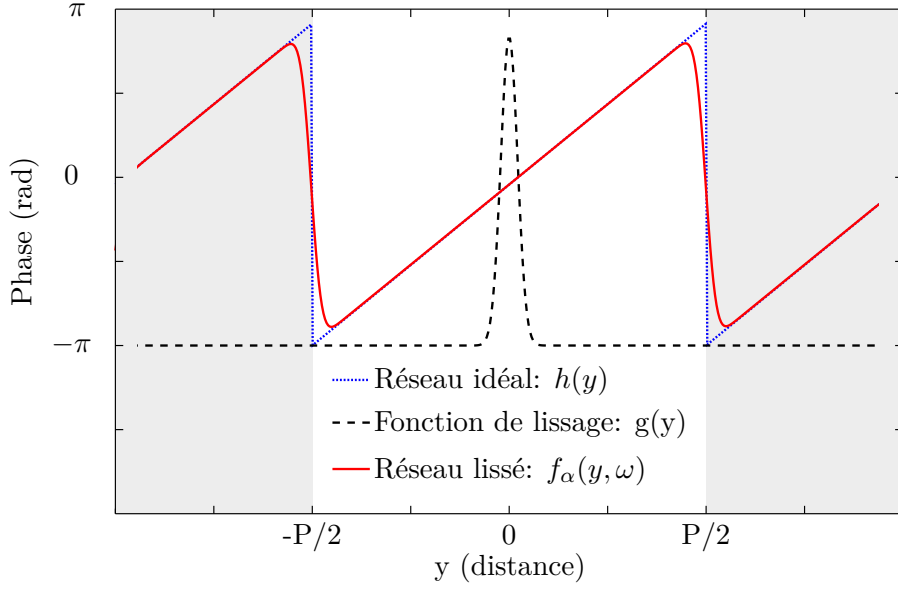


Figure 1.16: Représentation du réseau blazé idéal (courbe bleue), d'une fonction de lissage gaussienne (courbe noire) et du réseau blazé obtenu par lissage du réseau idéal (courbe rouge).

du dispositif ( $s(\omega) = 0$ ), à amplitude des réseaux fixée alors même que la loi de calibration en phase est imparfaite. Nous utilisons dans cet exemple la même loi de phase pour toutes les longueurs d'onde. La phase spectrale initiale ( $s(\omega) = 0$ ) contient deux termes: le premier traduit l'erreur de calibration en phase du SLM ( $\Phi_\alpha(\omega)$ ) et l'autre l'écart à la situation idéale de ligne à dispersion nulle. La Fig. 1.17(c) montre la phase spectrale initiale du dispositif (courbe bleue), mesurée par interférométrie spectrale [63, 64] avec le montage expérimental de la Fig. 1.24.

Rappelons en quelques mots le principe de l'algorithme d'extraction de la phase spectrale d'un spectre cannelé [65, 66] (Fig. 1.17(a)) résultant de l'interférence entre un champ  $\mathcal{E}_{réf}(\omega)$  et un champ  $\mathcal{E}(\omega) \exp(i\omega\tau)$  décalé temporellement d'un retard  $\tau$  par rapport au premier. L'expression théorique du spectre mesuré est :

$$S(\omega) \propto |\mathcal{E}(\omega) + \mathcal{E}_{réf}(\omega)|^2 \quad (1.47)$$

Ce qui donne après développement [65]:

$$\begin{aligned}
 S(\omega) \propto & \underbrace{|\mathcal{E}(\omega)|^2 + |\mathcal{E}_{réf}(\omega)|^2}_{\text{terme 1}} + \underbrace{|\mathcal{E}(\omega)| |\mathcal{E}_{réf}(\omega)| \exp [i (\omega\tau + \varphi(\omega) - \varphi_{réf}(\omega))]}_{\text{terme 2}} \\
 & + \underbrace{|\mathcal{E}(\omega)| |\mathcal{E}_{réf}(\omega)| \exp [-i (\omega\tau + \varphi(\omega) - \varphi_{réf}(\omega))]}_{\text{terme 3}}
 \end{aligned} \tag{1.48}$$

où  $\varphi$  et  $\varphi_{réf}$  sont les phases spectrales des champs qui interfèrent. Pour extraire le terme d'intérêt  $\varphi(\omega) - \varphi_{réf}(\omega) + \omega\tau$  on effectue la transformée de Fourier du spectre cannelé (Fig. 1.17(b)):

$$\begin{aligned}
 \mathcal{F}[S(\omega)](t) \propto & \underbrace{\mathcal{F}[|\mathcal{E}(\omega)|^2 + |\mathcal{E}_{réf}(\omega)|^2]}_{\text{terme 1}}(t) + \underbrace{\mathcal{F}[\mathcal{E}(\omega)\mathcal{E}_{réf}(\omega)^*]}_{\text{terme 2}}(t - \tau) \\
 & + \underbrace{\mathcal{F}[\mathcal{E}(\omega)^*\mathcal{E}_{réf}(\omega)]}_{\text{terme 3}}(t + \tau)
 \end{aligned} \tag{1.49}$$

On peut alors facilement identifier les trois termes de l'éq. 1.48 centrés respectivement en  $t = 0$ ,  $t = \tau$  et  $t = -\tau$ , à condition d'avoir introduit un retard  $\tau$  suffisant. Remarquons que le module de la transformée de Fourier montré Fig. 1.17(b) est représenté en fonction du pseudo-temps, la variable conjuguée de la longueur d'onde. En effet, nous opérons la transformée de Fourier rapide (fast fourier transform en anglais ou FFT) [67] directement sur les données du spectromètre [66] dont les valeurs correspondent à des longueurs d'onde régulièrement espacées en longueur d'onde. Il suffit de sélectionner le "terme 2" dans l'espace des pseudo-temps par un fenêtrage adapté (courbe rouge) puis d'effectuer la transformation de Fourier rapide inverse pour avoir le terme complexe:

$$|\mathcal{E}(\omega)| |\mathcal{E}_{réf}(\omega)| \exp [i (\omega\tau + \varphi(\omega) - \varphi_{réf}(\omega))] \tag{1.50}$$

dont l'argument est la phase que l'on souhaite mesurer. Notons qu'un ajustement linéaire permet d'éliminer la composante de retard de cette phase. On obtient ainsi, pour notre façonneur, la phase spectrale représentée par la courbe bleue Fig. 1.17(c).

On a ensuite ajusté le décalage des réseaux  $s(\omega)$  de sorte à compenser cette phase initiale. Remarquons qu'après une itération, l'erreur quadratique moyenne de la phase est de l'ordre de  $2 \cdot 10^{-2}$  rad soit de l'ordre de la précision du SLM ( $2\pi/255 \sim 2 \cdot 10^{-2}$  rad).

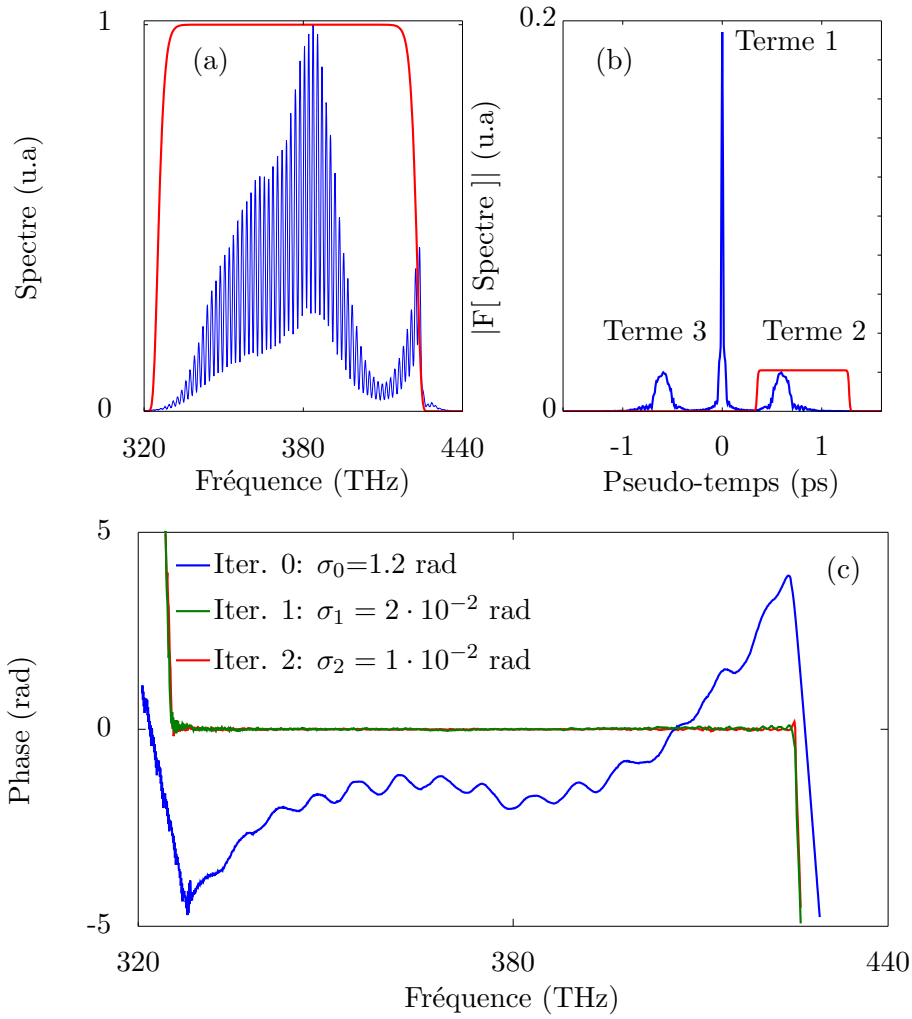


Figure 1.17: (a): Spectre cannelé mesuré résultant de l'interférence entre le champ produit par le dispositif et un champ de référence mesuré avec le montage représenté Fig. 1.24. Un masque de phase diffractif avec  $\alpha(\omega) = 1$  et  $s(\omega) = 0$  était appliqué avec le SLM.

(b): Transformée de Fourier du spectre cannelé (a) fenêtré par la courbe rouge afin d'atténuer les variations brutales en bord de spectre. (c): Phases spectrales du dispositif obtenues par fenêtrage du terme 2 dans l'espace des pseudo-temps pour  $s(\omega) = 0$  (courbe bleue) puis après une première itération de compensation de la phase mesurée (courbe verte) et une deuxième (courbe rouge).



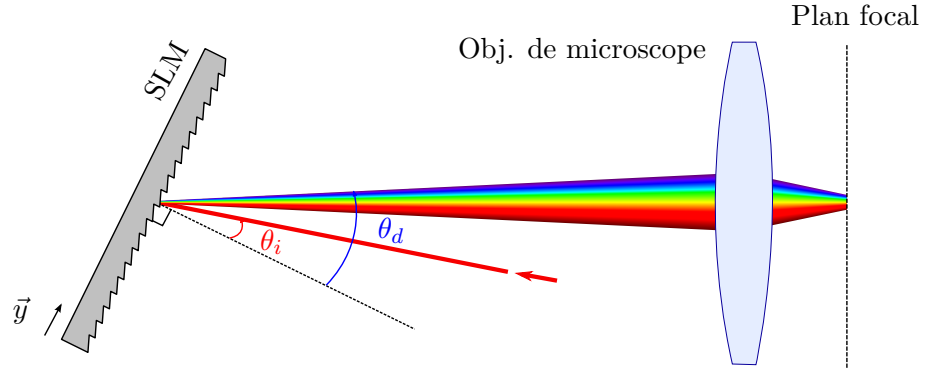


Figure 1.18: Représentation de la dispersion des angles de diffraction dans le cas de réseaux de même pas et décalage des volumes focaux après focalisation.

Une seconde itération améliore l'erreur quadratique moyenne qui est alors de  $1 \cdot 10^{-2}$  rad.

Nous avons donc montré de façon formelle que le façonnage avec un masque de phase 2D diffractif permettait de réaliser à la fois du façonnage en phase et du façonnage en amplitude en contrôlant respectivement la phase et l'amplitude de réseaux blazés appliqués aux composantes spectrales. Il est apparu que si on ne souhaite faire que du façonnage en phase spectrale, une calibration en phase parfaite du SLM n'est pas nécessaire mais il faut alors procéder à une mesure de la phase spectrale initiale du dispositif. Enfin, nous avons montré que si la loi de calibration est mal connue, il peut y avoir un couplage entre façonnage en amplitude et façonnage en phase auquel cas on peut itérer de façon à corriger ces effets. En revanche, si la loi de calibration en phase est parfaitement connue, l'impact de l'adressage optique est négligeable et les couplages entre façonnage en amplitude et phase sont très faibles.

**Réseau de phase de pas variable** Remarquons qu'en employant des réseaux blazés de même pas  $P$  pour chaque composante spectrale, on introduit une dispersion angulaire entre ces différentes composantes car l'angle de diffraction dépend de la longueur d'onde comme représenté Fig. 1.18. Cet effet a été négligé dans les études précédentes [50,60], en raison d'une bande spectrale inférieure à 25 nm. Dans notre cas où la largeur spectrale est supérieure à une centaine de nanomètres, il n'est plus possible de négliger la variation de l'angle de diffraction avec la longueur d'onde.

Intéressons-nous donc à l'impact de cette dispersion sur la focalisation du faisceau par un

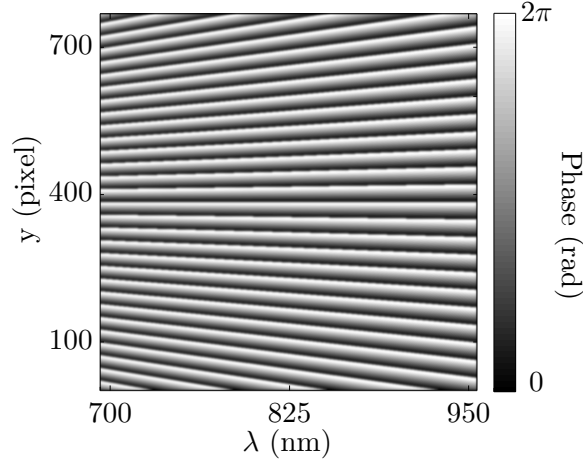


Figure 1.19: Masque de phase 2D diffractif avec réseau de pas variable pour diffracter toutes les composantes spectrales dans une même direction.

objectif de microscope. On suppose que l'objectif de microscope est centré et orthogonal à la composante spectrale correspondant à la pulsation centrale  $\omega_0$ . Dans ce cas, dans l'approximation des faibles angles, le faisceau correspondant à une composante spectrale quelconque fait un angle  $\theta_d - \theta_{d,0}$  avec l'axe optique de la lentille (voir la Fig. 1.18 pour les notations,  $\theta_{d,0}$  est l'angle de diffraction de la composante  $\omega_0$ ). Or d'après la loi des réseaux (aux petits angles):

$$\theta_i + \theta_d \simeq \frac{\lambda}{P} \quad (1.51)$$

ce qui donne  $\theta_d - \theta_{d,0} \simeq \frac{\lambda - \lambda_0}{P}$ . Après focalisation, une composante spectrale est donc focalisée à une distance  $\Delta(\lambda) \approx (\theta_d - \theta_{d,0})f \approx \frac{(\lambda - \lambda_0)f}{P}$  de la composante centrale. Dans notre cas, cela donne typiquement  $\Delta(\lambda = 700 \text{ nm}) \simeq -770 \text{ nm}$  et  $\Delta(\lambda = 900 \text{ nm}) \simeq 770 \text{ nm}$  ( $f=2\text{mm}$ ,  $P=10\text{pixels} \times 26\mu\text{m}$ ). Cela correspond à un étalement des taches focales de l'ordre de  $1.5 \mu\text{m}$ , ce qui est loin d'être négligeable devant la taille typique des taches focales à ces longueurs d'onde (de l'ordre de  $0.5 \mu\text{m}$ ). Cet effet va donc détériorer la résolution de notre microscope et réduire la probabilité de voir interagir par un processus non-linéaire deux composantes spectrales éloignées spectralement.

Il est cependant possible de s'affranchir de cet artefact en adaptant le pas du réseau à la composante spectrale [68]. En effet, si on fixe le pas  $P_0 = P(\lambda_0)$ , alors il suffit de prendre  $P(\lambda) = \frac{\lambda}{\lambda_0} P_0$  (Fig. 1.19) pour que toutes les composantes spectrales soient diffractées

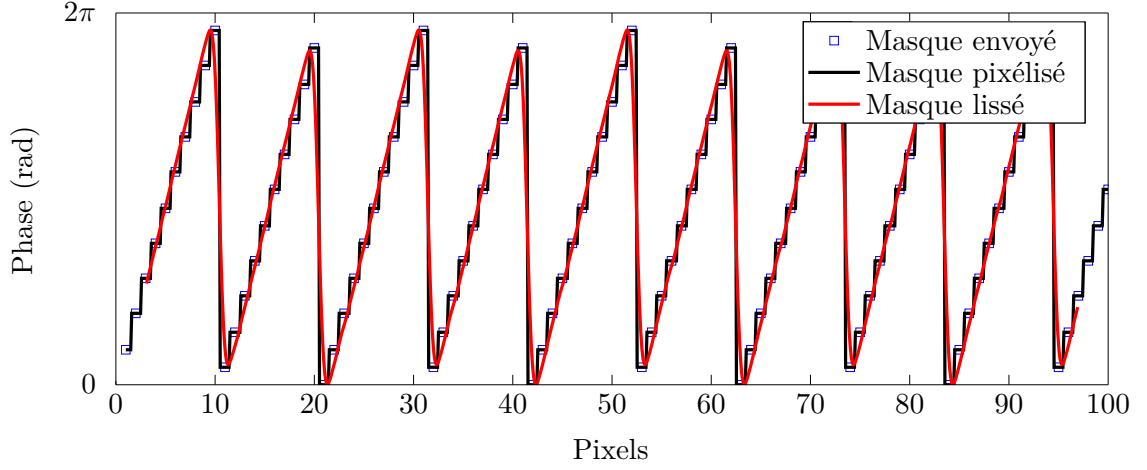


Figure 1.20: Réseau blazé vu par une composante spectrale de pas correspondant à 10.5 pixels. Le lissage est modélisé par une convolution avec une gaussienne de largeur à mi-hauteur 1 pixel.

dans la même direction et soient donc focalisées au même endroit. En pratique, deux stratégies sont possibles pour implémenter cette technique.

On peut adapter le pas du réseau et imposer qu'il corresponde à un nombre entier de pixels:  $P(\lambda) = \text{round}(\frac{\lambda}{\lambda_0} P_0 / \Delta y) \Delta y$  où  $\text{round}$  est la fonction qui arrondit un nombre réel à l'entier le plus proche. On obtient une distance maximale entre les taches focales de  $0.64 \mu\text{m}$  dans les mêmes conditions ( $f=2\text{mm}$ ,  $P_0=10$  pixels  $\times$   $26\mu\text{m}$  à  $800\text{nm}$ ). Ce n'est qu'une correction partielle.

En tirant parti du fait que nous disposons d'un SLM non pixélisé, nous pouvons ajuster finement les pas des réseaux, c'est-à-dire sans imposer qu'ils soient entiers. Cela revient à adapter les pentes des phases linéaires des réseaux blazés de façon à diffracter les composantes spectrales exactement dans la direction choisie, sans se préoccuper de la périodicité du réseau créé. La Fig. 1.20 montre le cas d'un réseau blazé de période 10.5 pixels. Le masque envoyé (pixélisé) est représenté par les rectangles bleus tandis que le masque lissé effectivement appliqué est représenté en rouge. Le masque lissé a été simulé en convoluant le masque pixélisé avec une fonction de lissage gaussienne (de largeur 1 pixel à mi-hauteur). On contrôle finement l'angle de blaze des réseaux et donc la direction principale de diffraction. En revanche, le fait que le masque initialement envoyé est pixélisé implique l'apparition de motifs périodiques qui diffractent de l'énergie dans d'autres modes. Pour évaluer cet effet, nous avons simulé le champ en sortie du façonneur.

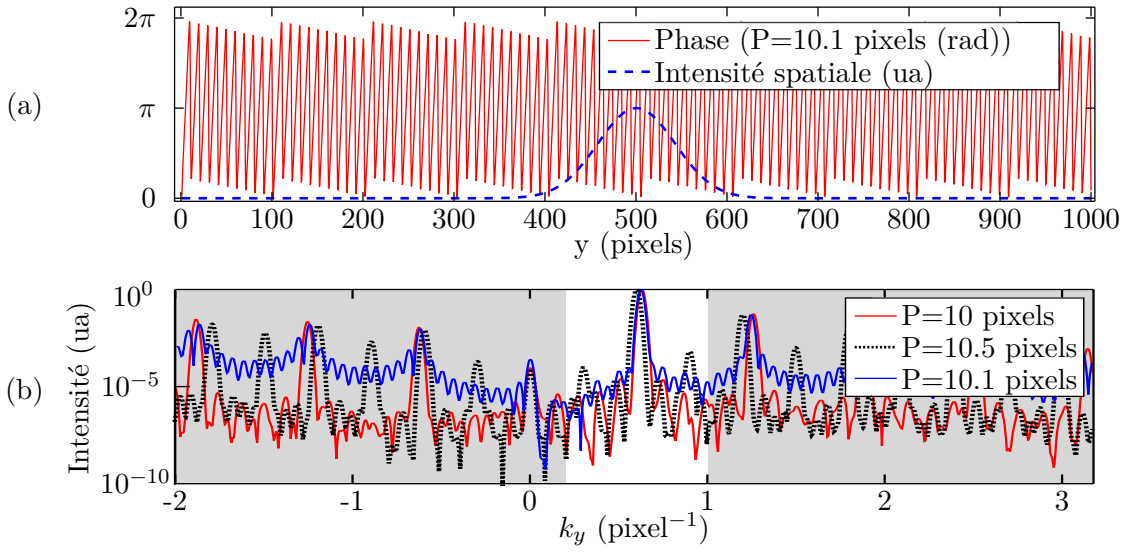


Figure 1.21: Simulations numériques:

- (a): réseau blazé de période  $P=10.1$  pixels  $\times 26 \mu\text{m}$  et intensité spatiale du champ incident (FWHM=100 pixels  $\times 26 \mu\text{m}$ ).
- (b): Transformée de Fourier du champ dont l'intensité spatiale est représenté en (a) pour différents pas de réseau (entier et non entiers). En pratique, un diaphragme est suffisant pour sélectionner l'ordre 1 de diffraction (zone blanche).

neur dans l'approximation de Fraunhofer pour plusieurs réseaux blazés filtrés par une fonction de lissage gaussienne de largeur à mi-hauteur 1 pixel. La Fig. 1.21(a) montre un réseau blazé lissé de période  $P=10.1$  pixels (courbe rouge) et l'intensité spatiale du champ simulé au niveau du masque (gaussienne de largeur à mi-hauteur de 100 pixels, courbe rouge). Notre SLM compte  $768 \times 768$  pixels actifs pour une surface  $20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ , ce qui correspond à des pixels de l'ordre de  $26 \mu\text{m}$ . On peut remarquer que le réseau de période  $P=10.1$  pixels présente deux motifs périodiques: l'un de période  $P$  pixels et l'autre de période  $10 \times P$ . La Fig. 1.21(b) montre les intensités des champs diffractés dans l'approximation de Fraunhofer (simulées à partir de l'éq. 1.37) par des réseaux blazés lissés de période 10, 10.1 et 10.5 pixels. La zone blanche indique l'ordre 1 de diffraction sélectionné avec un diaphragme placé suffisamment loin de la ligne 4f. Remarquons tout d'abord que l'effet souhaité est bien obtenu, les pics correspondant à l'ordre 1 de diffraction sont intenses et continuent décalés dans le cas d'un réseau de pas non-entier (10.1 et 10.5 pixels) par rapport au pas entier (10 pixels). Dans tous les cas, les imperfections des réseaux blazés lissés, notamment le lissage des sauts de phase, sont à l'origine de la diffraction dans d'autres ordres que l'ordre 1. On peut remarquer

l'apparition de nouveaux ordres dans le cas des pas non-entiers, par rapport au réseau de pas entier. Par exemple, dans le cas du réseau de pas 10.5 pixels (courbe noire), notons la présence d'ordres intermédiaires, ce qui traduit la présence d'un motif de période 2P, comme on peut le voir Fig. 1.20. On observe le même effet dans le cas du réseau de pas 10.1 pixels mais il s'agit là d'un cas plus défavorable. En effet, la présence d'un motif de période 10P se traduit par des ordres de diffraction très rapprochés (courbe bleue) dont certains ne sont pas éliminés par le filtrage spatial opéré par le diaphragme. Néanmoins, ces simulations montrent que l'intensité des ordres parasites passant le diaphragme reste très faible (inférieure à  $10^{-4}$ ).

Nous venons donc de montrer que l'utilisation d'un SLM adressé optiquement permet d'adapter continument le pas des réseaux de diffraction de façon à complètement compenser la dispersion angulaire inhérente à l'utilisation d'un masque de phase diffractif avec un spectre large et cela sans artefact significatif.

**Précision** La résolution en phase de cette technique est directement donnée par la résolution du SLM, soit  $\varphi_{Max}/N$  où  $\varphi_{max}$  est la dynamique maximale du SLM et  $N$  le nombre de niveaux de phase [69]. Il suffit en effet, de décaler le réseau blazé de la quantité  $s(\omega)$  voulue, puis d'échantillonner ce réseau avec les  $N$  niveaux de phases disponibles. Dans ce cas, le déphasage entre les réseaux est celui voulu à  $\frac{\varphi_{Max}}{N}$  près. En terme de façonnage en amplitude on peut évaluer la précision au premier ordre, soit de l'ordre de  $1/255 \sim 0.4\%$ .

**Dynamique maximale** Un SLM 2D adressé optiquement permet de lisser la phase réellement appliquée sur l'écran, ce qui permet *a priori* de s'affranchir complètement des effets de pixélisation. En réalité, le fait d'envoyer un masque échantillonné au SLM a un impact important sur la dynamique maximale de notre façonneur. Pour s'en rendre compte, on peut modéliser le lissage lié à l'adressage optique comme une convolution du masque pixélisé  $M(\omega, y)$  avec une fonction de lissage  $g(\omega, y)$ . Pour simplifier, on suppose la résolution optique du dispositif parfaite, de façon à avoir une correspondance parfaite entre la variable d'espace  $x$  et la fréquence optique  $\omega$ , ce qui permet d'écrire le masque

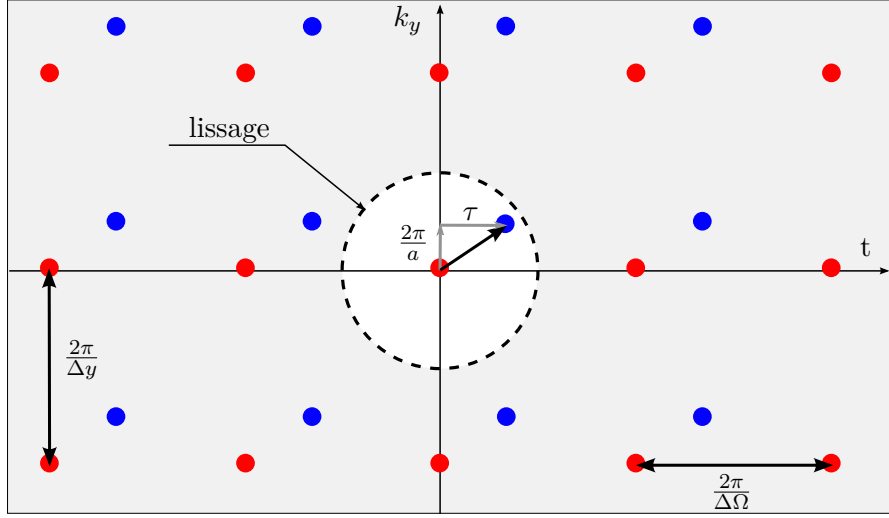


Figure 1.22: Représentation schématique de la transformée de Fourier du masque de phase initial, avant lissage optique. La fonction de lissage optique optimale vaut 0 partout sauf dans le disque délimité par les pointillés où elle vaut 1. Les points rouges correspondent à un masque sans phase appliquée, et les points bleus à une phase linéaire selon  $y$  (réseau blazé de pas  $a$ ) et selon  $\omega$  (retard  $\tau$ ).  $\Delta y$  est la distance entre les pixels et  $\Delta\Omega$  la distance en pulsation optique entre deux pixels.

en fonction de la variable de pulsation optique  $\omega$  plutôt que la variable d'espace  $x$ :

$$T(\omega, y) = g(\omega, y) \otimes M(\omega, y) \quad (1.52)$$

où  $\otimes$  est une convolution portant sur les deux dimensions  $\omega$  et  $y$ , et:

$$M(\omega, y) = \sum_{n,m=-N/2}^{N/2-1} A_{n,m} \exp(i\phi_{n,m}) \text{rect}\left(\frac{\omega - \omega_n}{\Delta\Omega}\right) \text{rect}\left(\frac{y - y_n}{\Delta y}\right) \quad (1.53)$$

La transformée de Fourier de l'expression précédente par rapport à  $\omega$  et  $y$  donne:

$$\tilde{T}(t, k_y) = \tilde{g}(t, k_y) \cdot \tilde{M}(t, k_y) \quad (1.54)$$

En remarquant l'analogie entre les équations 1.53 et 1.31, on peut procéder de manière similaire à la section 1.4.3. Ainsi, le masque (eq. 1.53) est une somme discrète de fonctions rectangles translatées – ici à deux dimensions – avec des pas  $\Delta y$  et  $\Delta\Omega$ . La transformée de Fourier  $\tilde{M}(t, k_y)$  sera donc le produit de fonctions sinc par une série de Fourier, correspondant à une fonction périodique de périodes  $2\pi/\Delta y$  et  $2\pi/\Delta\Omega$ . Comme

on peut le voir sur la Fig. 1.22, la fonction de lissage  $\tilde{g}(t, k_y)$  permet de ne conserver que le terme central. Lorsqu'on ajoute une phase linéaire selon  $y$  avec un réseau blazé et une phase linéaire selon  $\omega$  (soit un retard  $\tau$ ), cela revient à traduire les ordres de la série de Fourier. La situation extrême qui va limiter notre dynamique est atteinte lorsque le terme central sort de la fenêtre de lissage. Remarquons que dans ce cas, la périodicité de la série de Fourier assure qu'un autre terme entrera dans la fenêtre de filtrage mais ce terme correspond à un autre ordre de diffraction. Si le lissage est parfait, cette situation correspond à un pas maximal du réseau blazé de  $\Delta y/2$  et à un retard maximal de  $\frac{2\pi}{2\Delta\Omega}$ . Dans notre cas, cela donne environ 3 ps. Remarquons que nous avons supposé la résolution optique du système réseau-miroir cylindrique parfaite mais en pratique la résolution spectrale finie a le même effet que le lissage de l'adressage optique et peut donc être l'élément limitant si la résolution spectrale est inférieure à celle du SLM.

Ainsi, la nature pixelisée du masque programmé est un majorant de la pente maximale que l'on peut appliquer avec ce SLM adressé optiquement. Lorsqu'on se rapproche de la dynamique maximale, limitée par le SLM ou par la résolution spectrale de la ligne 4f, les composantes spectrales locales sont atténuées par l'effet du lissage jusqu'à extinction totale lorsque la pente est trop forte. La dynamique en amplitude quant à elle est limitée par le fait que nous utilisons un dispositif passif (sans amplification) et par conséquent on ne peut produire que des spectres à l'intérieur de l'enveloppe du spectre incident. Notons qu'on peut totalement annuler le spectre à condition de filtrer parfaitement l'ordre 0, ce qui implique de se placer suffisamment loin ou d'utiliser un filtrage de Fourier.

**Lissage de la phase et répliques temporelles** Un modulateur de phase 2D intégrant un système de lissage de la phase n'est pas adapté pour une utilisation dans une ligne 4f en mode réflectif (à l'ordre 0) car les répliques liées au lissage des sauts de phase sont loin d'être négligeables contrairement aux SLM pixelisés dont les transitions sont beaucoup plus abruptes [60]. Comme nous l'avons déjà mentionné à la section 1.4.3, pour un retard pur  $\tau$ , cet effet est à l'origine de répliques centrées à  $t=0$  et distantes de  $\tau$ . La question que nous considérons maintenant est de savoir ce qu'il advient de

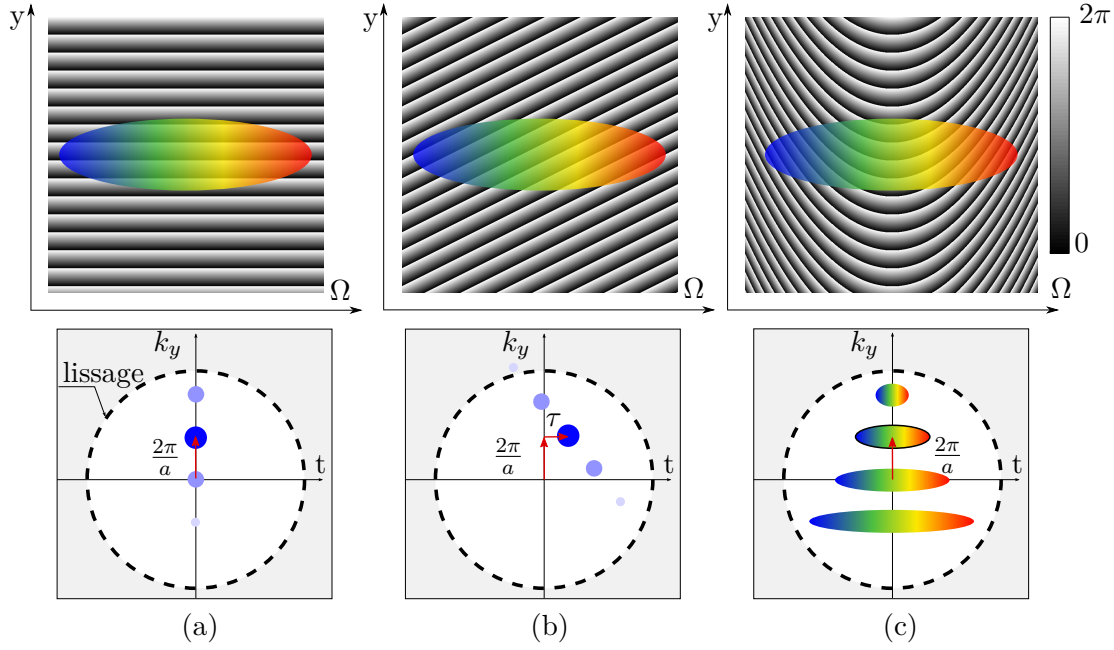


Figure 1.23: Représentation schématique des masques de phase 2D et de leurs transformées de Fourier, dans le cas d'une phase linéaire selon  $y$  et:

- (a): d'une **phase spectrale nulle**;
- (b): d'un **retard pur**;
- (c): d'une **phase spectrale quadratique**.

Le lissage des discontinuités du masque par l'adressage optique est à l'origine de la diffraction dans les autres ordres que l'ordre 1.

ces répliques liées au lissage lorsqu'on implémente un masque diffractif. Si on reprend l'expression 1.40 du champ en sortie du façonneur, il apparaît qu'il dépend directement de la transmission du masque  $\tilde{T}(\omega, k_y)$  et par conséquent l'existence de répliques dépend des structures périodiques de ce masque. Lorsqu'on introduit une phase linéaire selon  $y$  par l'intermédiaire d'un réseau blazé et une phase spectrale nulle (Fig. 1.23 (a)), cela revient à traduire la transformée de Fourier du masque qui, rappelons-le, est fenêtré par une fonction de filtrage. Par conséquent, il y a différents faisceaux, correspondant tous à des impulsions centrées sur  $t=0$ , mais envoyés dans les différents ordres de diffraction du réseau de phase et qu'on peut donc filtrer avec un diaphragme. Si en plus, on ajoute un retard, c'est-à-dire une phase linéaire par rapport à  $\omega$  (Fig. 1.23 (b)), alors une fois de plus on translate la transformée de Fourier du masque d'une composante supplémentaire selon  $t$ . Comme dans le cas d'un masque à l'ordre 0 (non diffractif), on voit apparaître des répliques temporelles espacées d'un retard  $\tau$  [60] mais tout l'intérêt de cette approche



est que, dans ce cas, elles correspondent à d'autres ordres de diffraction du réseau selon  $y$  (ordres -1, 0, 2...) et par conséquent, il est possible de les filtrer spatialement. Le cas d'une phase spectrale quelconque (quadratique par exemple Fig. 1.23 (c)) est plus complexe à analyser. On peut néanmoins raisonner en considérant que la phase spectrale est linéaire par morceaux et on voit qu'il y a des répliques de formes temporelles variées mais qu'il est toujours possible de les filtrer spatialement.

En conclusion, un SLM 2D adressé optiquement utilisé avec un masque 2D diffractif permet de se débarrasser totalement des répliques temporelles. En effet, l'adressage optique permet d'éviter les répliques liées aux interstices et aux effets d'échantillonnage. De plus l'utilisation de réseaux blazés dans la dimension verticale permet d'introduire une dispersion angulaire entre les répliques liées aux effets de bord (lissage des discontinuités) et l'impulsions principale, ce qui permet de les bloquer par un simple filtrage spatial avec un diaphragme.

### Alignement et caractérisation

Nous avons construit un interféromètre de Michelson (Fig. 1.24) autour de notre ligne 4f de façon à contrôler régulièrement la phase  $\Phi_0(\omega)$  qu'elle introduit mais aussi pour faciliter son alignement. En effet, la position du réseau de diffraction (ou de manière équivalente du miroir de repli) peut être finement ajustée en contrôlant la phase spectrale du dispositif par interférométrie spectrale [63–66].

### Calibrations

Il y a deux types de calibration à considérer: une calibration en phase et une calibration en longueur d'onde.

**Calibration en longueur d'onde** La calibration en longueur d'onde de la ligne 4f consiste à établir la relation entre un pixel  $x_i$  du SLM et la longueur d'onde moyenne  $\lambda_i$  des composantes spectrales focalisées dessus. Ce type de calibration est simple à mettre en œuvre à condition de disposer d'un spectromètre lui-même déjà calibré (généralement avec une lampe spectrale dont les raies sont adaptées à la région spectrale considérée) et de résolution suffisante.

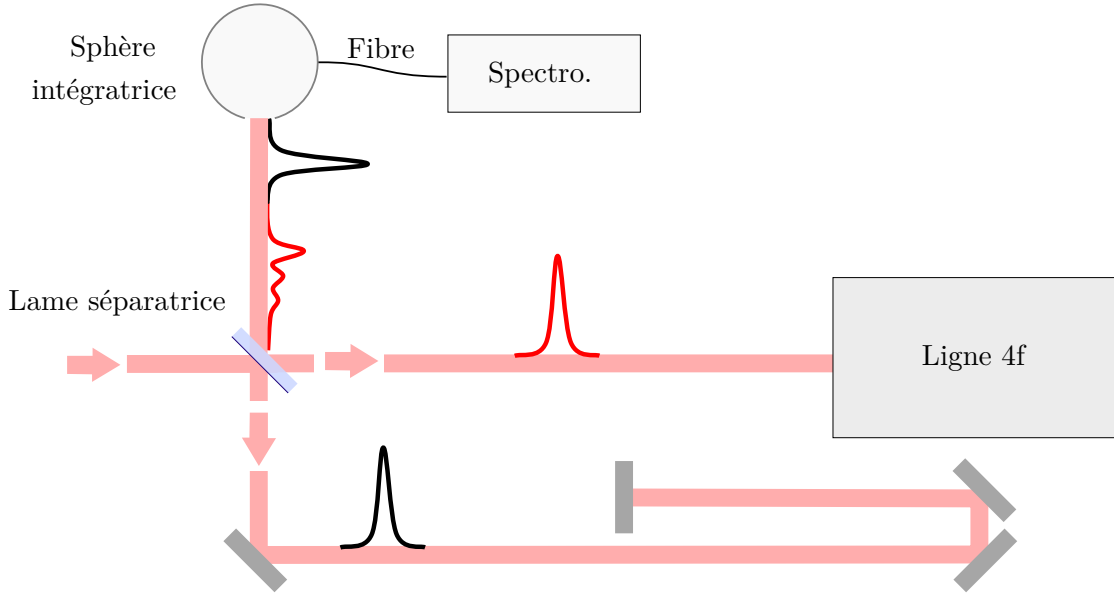


Figure 1.24: Mesure de la fonction de transfert spectrale d'une ligne 4f par interférométrie spectrale. La ligne 4f est intégrée dans le bras d'un interféromètre de Michelson de façon à mesurer la phase qu'elle introduit par rapport à une impulsion de référence.

Pour cette calibration, nous utilisons pleinement les propriétés de façonnage en amplitude du façonneur. En effet, nous envoyons toutes les composantes spectrales dans l'ordre 0, bloqué avec un diaphragme ou bien des lames de rasoir, sauf une dizaine de raies spectrales ( $\delta x = 1$ ) que l'on envoie dans l'ordre 1, couplé dans le spectromètre avec une sphère intégratrice par exemple. Connaissant parfaitement les positions des raies que nous avons programmées (en pixels), un ajustement gaussien des raies mesurées avec le spectromètre permet de déterminer précisément les longueurs d'onde correspondantes. Nous définissons la loi de calibration  $\lambda(x)$  par un ajustement polynomial à l'ordre 2 des données expérimentales  $(x_i, \lambda_i)_i$ . Cette calibration doit être réitérée dès que le trajet du faisceau dans le dispositif de façonnage a été modifié.

La Fig. 1.25 montre un spectre de calibration typique dont on extrait les positions des pics pour la loi de calibration mais aussi les largeurs à mi-hauteur de façon évaluer la résolution spectrale du façonneur. On mesure une résolution de l'ordre de 1 nm sur tout le spectre. Remarquons que la résolution optique du système réseau-lentille est du même ordre de grandeur et par conséquent, on peut supposer que la résolution du masque du SLM, exprimée en unité de longueur d'onde, est meilleure que la résolution spectrale

(optique) du système. Avec 768 pixels entre 681 et 944 nm, la résolution du masque est au mieux de 0.34 nm.

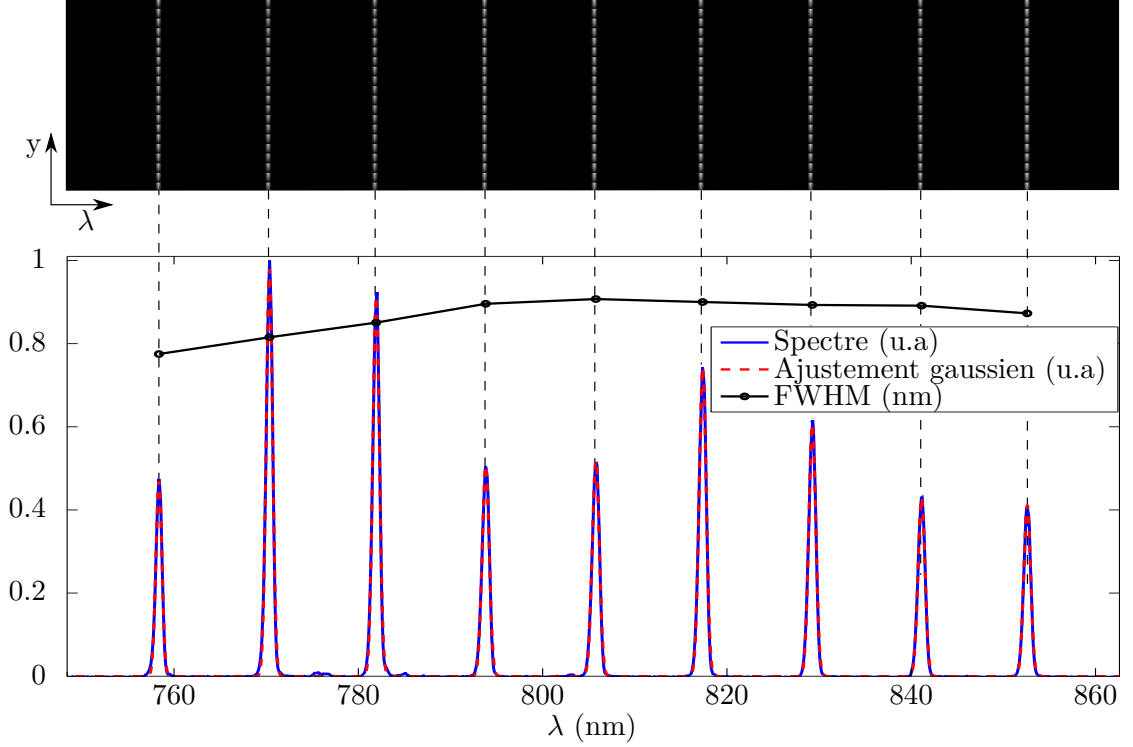


Figure 1.25: Peigne correspondant à neuf composantes spectrales diffractées dans l'ordre 1 par un masque diffractif avec 9 raies de 1 pixels de largeur. La courbe noire représente les largeurs à mi-hauteur (full width half maximum en anglais ou FWHM) des pics et correspond à la résolution spectrale du façonneur.

**Calibration en phase** Le SLM Hamamatsu 2D que nous utilisons (X8267) se pilote par l'intermédiaire d'un câble VGA 1024x768, qui contrôle en réalité 768x768 pixels effectifs sur une surface de 20x20mm. La phase est codée en 256 niveaux de gris. Nous avons adapté une technique ingénieuse, précédemment utilisée pour calibrer des façonneurs 1D [70, 71], pour calibrer en phase notre SLM 2D. L'idée est d'implémenter une technique interférométrique pour mesurer la phase induite par le SLM. Dans la mesure où l'on cherche à mesurer une très faible variation de phase  $\delta\varphi \approx \frac{2\pi}{255}$ ; il faut à la fois une technique interférométrique extrêmement stable mais aussi une méthode de mesure très précise. Pour répondre à ces deux contraintes, nous utilisons un matériau biréfringent [72] pour créer la paire d'impulsions et nous utilisons une technique d'interférométrie spectrale pour mesurer la phase [63–66]. Le principe de cette mesure de la loi de calibra-

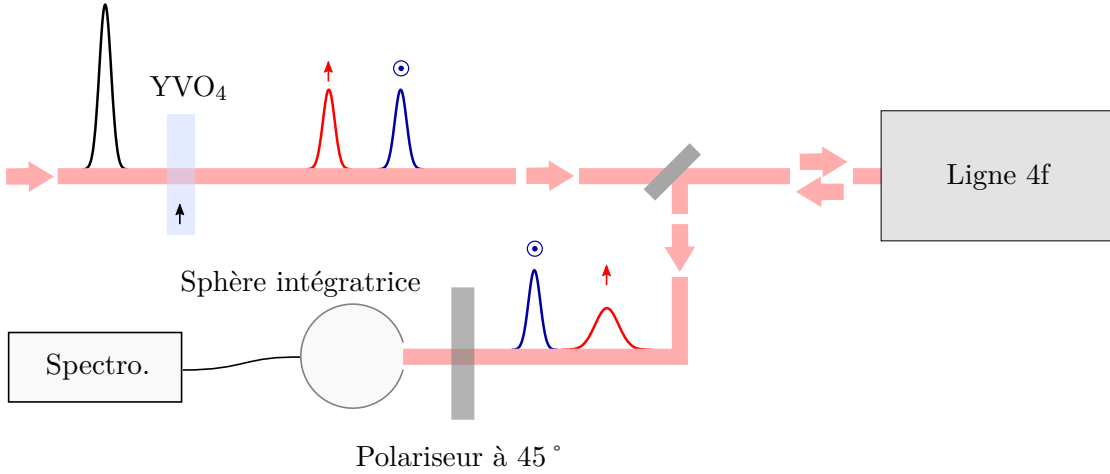


Figure 1.26: Montage expérimental pour la calibration en phase d'un SLM 2D. Un matériau biréfringent dont les axes neutres sont alignés sur ceux du SLM crée deux répliques d'une impulsion. Seule l'une d'entre elles sera façonnée, l'autre servira de référence pour une mesure de phase par interférométrie spectrale. Un polariseur projette les deux impulsions qui peuvent interférer dans un spectromètre.

tion en phase du SLM repose sur le fait qu'un masque à cristaux liquides ne modifie que la composante de polarisation correspondant à l'axe extraordinaire du milieu à cristaux liquides (section 1.4.3). On peut donc envoyer une paire d'impulsions polarisées orthogonalement de façon à ce que l'une des polarisations soit alignée sur l'axe extraordinaire (façonné) et l'autre sur l'axe ordinaire (inchangé). Dans ce cas, l'impulsion inchangée peut servir de référence pour une expérience d'interférométrie spectrale [63–66], c'est-à-dire pour mesurer la différence de phases spectrales entre l'impulsion de référence et l'impulsion façonnée par une mesure de spectre cannelé.

Le montage expérimental est représenté Fig. 1.26. Pour produire une paire d'impulsions polarisées orthogonalement et de retard parfaitement stable on utilise une lame d'un matériau biréfringent uniaxe (Vanadate d'Yttrium ou  $\text{YVO}_4$ , de 2 mm d'épaisseur) qui donne un décalage temporel de l'ordre de 1.5 ps entre les impulsions. Il est essentiel d'aligner les axes neutres de la lame biréfringente avec ceux du SLM. Pour cela, on opère de la façon suivante.

- Placer le cristal biréfringent en amont de la ligne 4f.
- Inscrire un réseau de diffraction blazé dans la direction  $\vec{y}$  du SLM (si la loi de phase est totalement inconnue, on peut supposer une loi proportionnelle avec une

dynamique maximale de  $2\pi$ ).

- Sélectionner l'ordre 1 diffracté avec un diaphragme ou une paire de lames de rasoir.
- Coupler ce faisceau dans un spectromètre, par exemple avec une sphère intégratrice.
- Observer des franges d'interférence avec le spectromètre, qui traduisent que les deux impulsions sont projetées sur l'axe de façonnage du SLM.
- Ajuster finement l'angle du cristal biréfringent pour annuler les franges.

Le fait d'annuler le contraste des franges permet de s'assurer avec une grande précision que seule une impulsion est envoyée dans l'ordre 1 de diffraction et donc que seule une des deux polarisations est affectée par le SLM. On en conclut que les axes neutres de la lame biréfringente sont bien alignés avec ceux du SLM. En considérant à nouveau le faisceau réfléchi par le SLM (ordre 0), il suffit ensuite de placer un polariseur devant le spectromètre, comme représenté Fig. 1.26, de façon à faire interférer les deux impulsions de polarisations orthogonales et d'appliquer un niveau de gris uniforme sur l'écran du SLM (ordre 0). On enregistre les spectres correspondants à chacun des niveaux de gris  $i$  appliqué. En utilisant l'algorithme usuel d'extraction de la phase par traitement de Fourier de l'interférométrie spectrale [65, 66, 73], on récupère la phase spectrale  $\varphi_i$  correspondante à chacun des spectres. On obtient  $\phi_i(\omega) = \varphi_i(\omega) - \varphi_0(\omega)$  la phase induite par chacun de niveaux de gris, en prenant comme référence des phases le niveau de gris nul.

La Fig. 1.27 représente les données expérimentales obtenues avec notre ligne 4f et un spectromètre Ocean Optics HR4000. Notons l'excellente stabilité des franges spectrales sur un temps d'acquisition total de plusieurs minutes. Un montage interférométrique classique comprenant des bras de plus d'un mètre donne des fluctuations de l'ordre de  $\lambda_0$  sur quelques minutes dans les mêmes conditions, notamment à cause de la climatisation et des ondes acoustiques du bâtiment. La carte des phases produite en fonction du niveau de gris et de la longueur d'onde est représentée Fig. 1.28 (a). Elle révèle une dépendance importante avec la longueur d'onde que l'on peut séparer en deux termes:

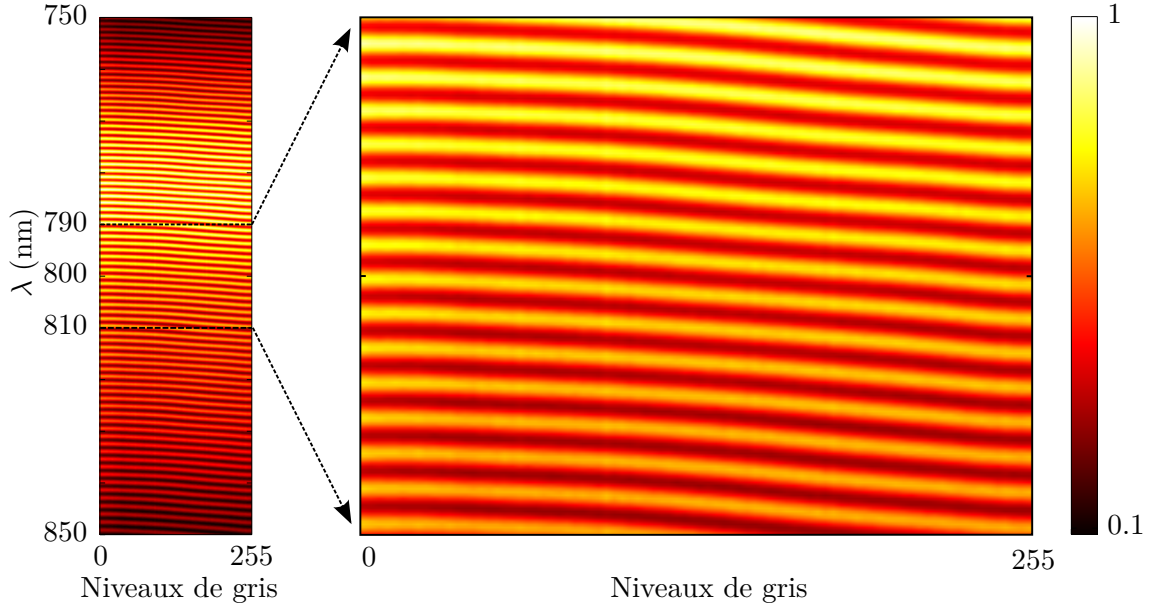


Figure 1.27: Spectres cannelés correspondant aux 256 niveaux de gris de notre SLM pour la calibration de notre SLM.

- un terme oscillant (d'amplitude  $\sim 0.05$  rad et de période  $\sim 15$  nm) dont l'origine est vraisemblablement liée au traitement diélectrique en surface du SLM;
- un terme quadratique, qui augmente avec le niveau de gris, dont l'origine est certainement une dépendance de la dispersion des cristaux liquides en fonction de leur orientation. Ce terme implique que la dynamique maximale du SLM est supérieure à  $2\pi$  au centre du spectre mais tout juste de  $2\pi$  sur les bords.

Cette méthode se révèle particulièrement simple et efficace pour effectuer la calibration. Notons qu'il peut être nécessaire d'effectuer régulièrement cette calibration. A longueur d'onde et niveau de gris fixé, on peut avoir un écart de près de  $0.1\pi$  d'un jour à l'autre, un écart qui semble lié à la puissance du faisceau incident. Remarquons aussi que cette méthode est résolue en longueur d'onde (donc en  $x$ ) mais pas selon la dimension verticale  $y$ . En effet, une composante spectrale est étalée selon la dimension verticale et cette méthode mesure la phase moyenne introduite selon cette dimension. On peut néanmoins supposer que la variation de la loi de calibration le long d'une ligne verticale sur le SLM est faible, d'autant plus que le faisceau n'est étalé que de quelques millimètres dans cette dimension.

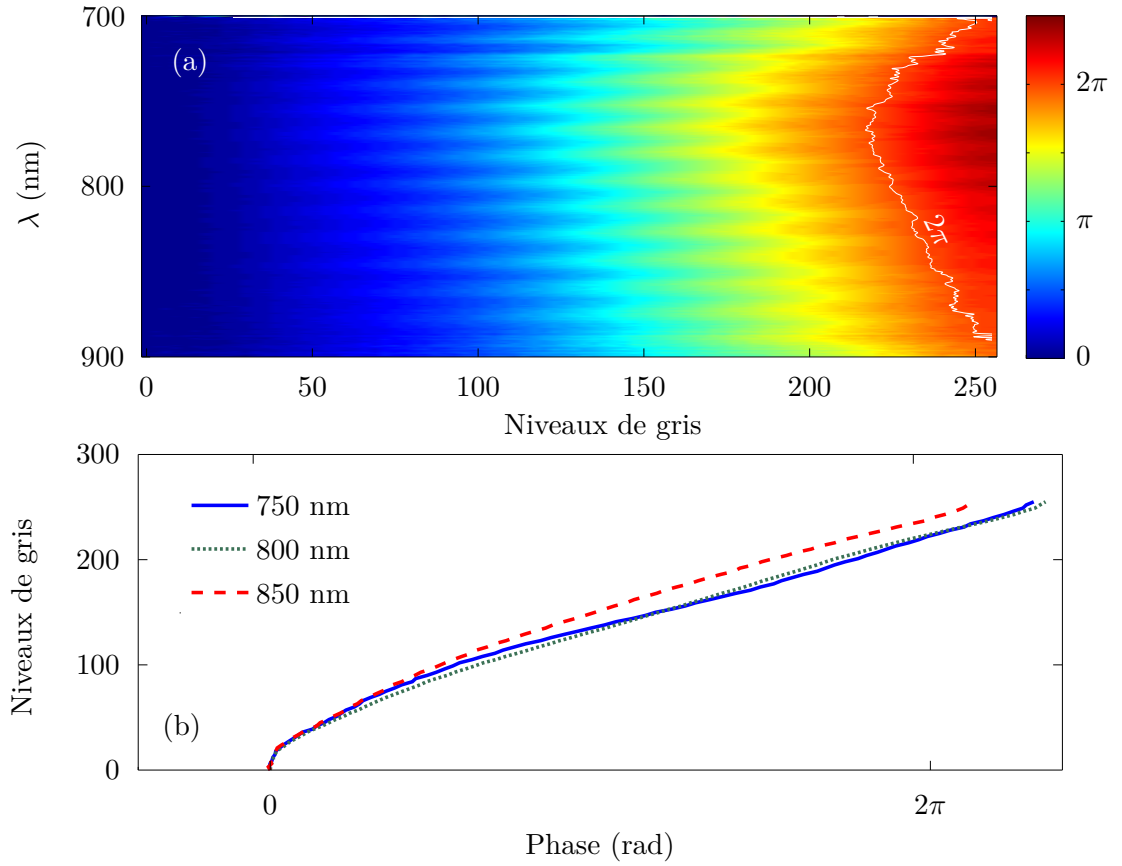


Figure 1.28: Courbes de calibration extraites des spectres cannelés de la Fig. 1.27. (a) représente la phase ajoutée par le SLM en fonction du niveau de gris et de la longueur d'onde et (b) représente trois lois de calibration correspondant aux longueurs d'onde 750, 800 et 850 nm.

**Phase à l'origine** Nous appelons phase à l'origine la phase induite par le SLM alors qu'un niveau de gris nul est appliqué sur tout le masque, car il s'agit de la référence des phases pour la mesure de la calibration du SLM en niveau de gris (section précédente). Elle peut s'interpréter comme une déformation de l'écran du SLM qui n'est pas parfaitement plan sur toute sa surface ( $4 \text{ cm}^2$ ). En réalité, nous pouvons déjà nous affranchir des déformations selon la dimension horizontale selon laquelle les composantes spectrales sont dispersées. En effet, la mesure par interférométrie spectrale de la phase initiale du dispositif (Fig. 1.24), c'est-à-dire correspondant à des réseaux blazés non-décalés ( $s(\omega) = 0$ ), intègre la déformation du SLM dans la dimension horizontale. Reste la déformation selon la dimension verticale. Dans la mesure où le faisceau ne s'étend que sur quelques millimètres dans cette dimension, on peut supposer la déformation

suffisamment faible pour être négligée.

**Dissymétrie de la phase spatiale** Dans une ligne 4f utilisant un miroir cylindrique il existe une autre source de distorsion de la phase spatiale: la dissymétrie importante entre les dimensions x et y. En effet, la dimension x du champ est imagée par le miroir cylindrique en double passage tandis que la dimension y se propage librement. Tout se passe comme si la dimension y se propageait d'une distance supplémentaire de 4f (soit 4 x 25cm = 1 mètre dans notre cas) par rapport à la dimension x. Pour évaluer l'impact de cette différence sur la focalisation par notre objectif de microscope, nous utilisons les relations de conjugaison pour les faisceaux gaussiens, soit, avec les notations de la Fig. 1.29:

$$dd' = ff' - q_0q'_0 \quad -dq'_0 = d'q_0 \quad (1.55)$$

où  $q_0 = i\frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ . Supposons que  $f = f' \sim 2$  mm et que l'objectif de microscope est situé 10 m après le *waist*, c'est-à-dire  $d_x = 10$  m,  $d_y = d_x + 4f_{\text{façonneur}} = 11$  m ( $f_{\text{façonneur}} = 25$ cm) alors dans ce cas,  $d'_x \sim 115$  nm,  $d'_y \sim 120$  nm ( $\lambda_0 = 800$  nm,  $f = w_0 = 2$  mm). Dans ce cas simplifié, l'impact de la différence de propagation entre la dimension x et la dimension y se traduit par une focalisation qui se fait dans des plans distants de seulement 5 nm, or l'extension du volume vocal selon z est typiquement de 2  $\mu$ m. Cet effet est donc négligeable pour les expériences de microscopie.

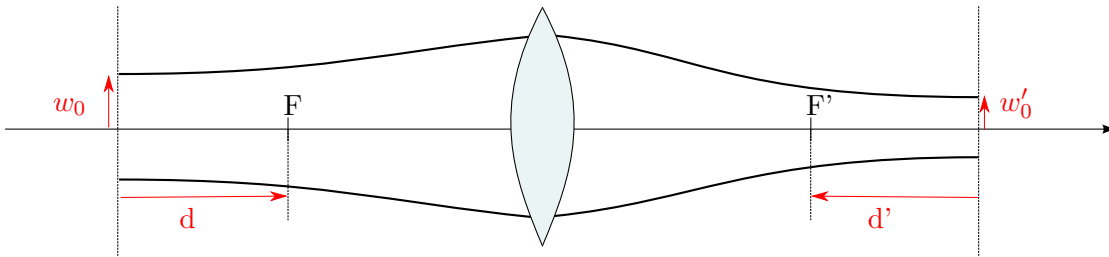


Figure 1.29: Schéma pour les relations de conjugaison des faisceaux gaussiens.

### Exemples de façonnage en phase et en amplitude

Nous allons maintenant montrer quelques exemples d'impulsions produites avec notre dispositif.



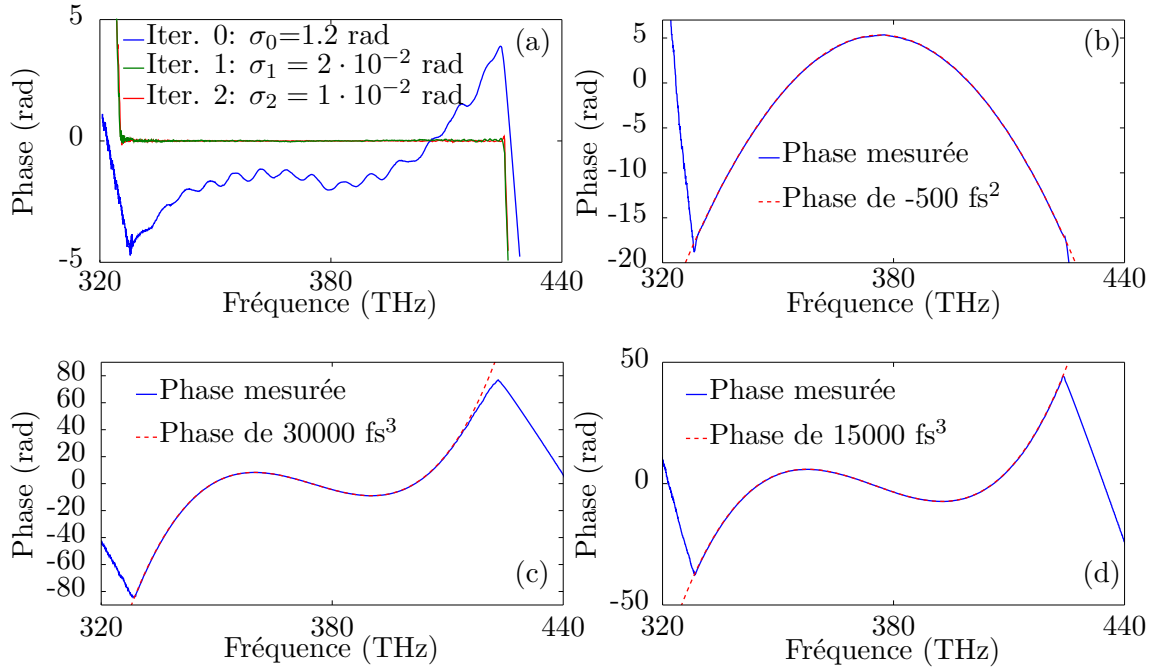


Figure 1.30: Phases spectrales produites par notre ligne 4f avec des masques diffractifs. (a) montre la phase spectrale initiale du dispositif puis les phases spectrales après une (courbe verte) puis deux itérations (courbe rouge) de compensation par le SLM. (b), (c) et (d) sont différentes phases programmées (courbes rouges) et mesurées par interférométrie spectrale (courbes bleues) avec le montage montré Fig: 1.24.

**Façonnage en phase spectrale** Nous allons montrer expérimentalement que cette approche permet de faire du façonnage purement en phase sans connaître précisément la loi de calibration en phase du SLM. Nous utilisons donc une même loi de calibration pour toutes les composantes spectrales. Cette loi est la moyenne des lois de calibration obtenues avec la méthode interférométrique décrite précédemment. Nous caractérisons la phase introduite par le dispositif par interférométrie spectrale par l'intermédiaire de l'interféromètre de Michelson représenté Fig: 1.24. Un diaphragme permet de sélectionner le faisceau diffracté. Nous avons utilisé un spectromètre Acton (Princeton Instruments, USA) avec un temps d'intégration de  $\sim 6$  ms. La Fig. 1.30 présente un ensemble de phases spectrales produites avec des masques diffractifs avec une amplitude de diffraction maximale ( $\alpha(\omega) = 1$ ). La Fig. 1.30(a) montre qu'en une itération le SLM compense parfaitement la phase initiale du façonneur, avec une précision qui atteint le bruit de la mesure. Les courbes en pointillés rouges indiquent la phase programmée (à un terme linéaire près) et les courbes bleues les phases spectrales produites mesurées

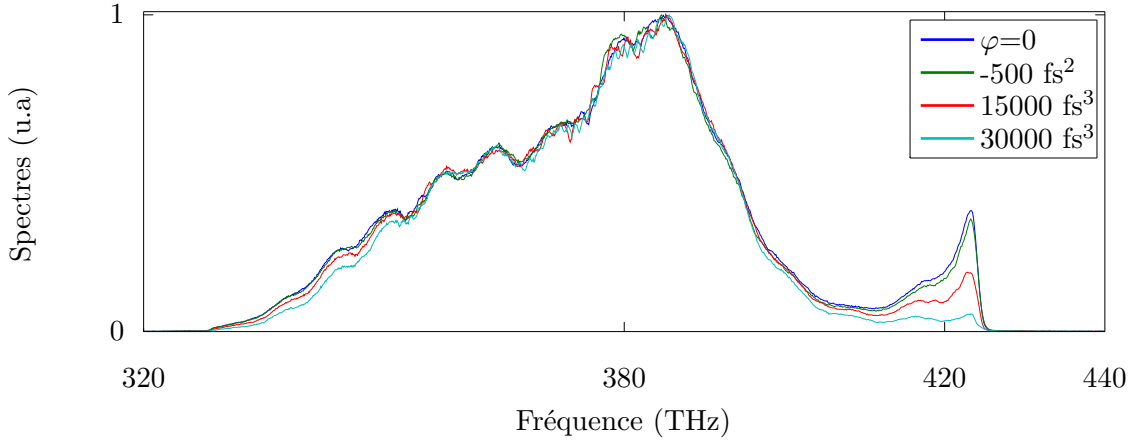


Figure 1.31: Spectres mesurés après le façonneur d'impulsions pour différentes phases spectrales produites représentées Fig. 1.30 (temps d'intégration 6 ms, moyennés 10 fois).

par interférométrie spectrale. On peut observer un excellent accord entre les phases programmées ( $-500 \text{ fs}^2$  (b),  $30000 \text{ fs}^3$  (c) et  $15000 \text{ fs}^3$  (d)) et les phases mesurées. Notons que l'écart moyen entre les phases programmées et les phases mesurées est de l'ordre de l'incertitude de la mesure. Nous avons par ailleurs mesuré les spectres correspondant à chacune de ces phases spectrales; ils sont représentés Fig. 1.31 (temps d'intégration de  $\sim 6 \text{ ms}$  et moyennés 10 fois). Remarquons que lorsque la phase spectrale est de pente importante le spectre mesuré est d'amplitude plus faible. Cet effet est particulièrement visible en bord de spectre pour une phase appliquée de  $30000 \text{ fs}^3$ . On peut attribuer cet artefact soit à l'adressage optique qui atténue l'intensité diffractée, soit à la résolution spectrale du système réseau-miroir cylindrique qui a exactement le même effet.

Connaissant l'amplitude du champ en sortie du dispositif ainsi que sa phase spectrale (en supposant l'impulsion entrante limitée par transformée de Fourier) on peut reconstruire  $\mathcal{E}(t)$  le champ produit par notre façonneur. Les Fig. 1.32 et 1.33 montrent les représentations de Wigner [74, 75] et les spectrogrammes de différentes formes d'impulsions. On rappelle l'expression de la fonction de Wigner [74, 75]:

$$\begin{aligned} W(t, \omega) &= \int \mathcal{E}\left(t + \frac{t'}{2}\right) \mathcal{E}^*\left(t - \frac{t'}{2}\right) \exp(i\omega t') dt' \\ &= \int \mathcal{E}\left(\omega + \frac{\omega'}{2}\right) \mathcal{E}^*\left(\omega - \frac{\omega'}{2}\right) \exp(-i\omega t') \frac{d\omega'}{2\pi} \end{aligned} \quad (1.56)$$

ainsi que celle du spectrogramme [5]:

$$S(t, \omega) = \left| \int \mathcal{E}(t') g(t - t') \exp(i\omega t') dt' \right|^2 \quad (1.57)$$

où nous avons pris  $g$  une gaussienne de largeur à mi-hauteur 10 THz (qui correspond dans le domaine temporel à une gaussienne de l'ordre de 40 fs). Les traces expérimentales représentées Fig. 1.32 et 1.33 reproduisent bien les formes caractéristiques des fonctions de Wigner et des spectrogrammes pour des impulsions limitée par transformée de Fourier, avec une phase spectrale quadratique et une phase du troisième ordre. On peut remarquer la présence d'oscillations de la fonction de Wigner dans la Fig. 1.32 qui résultent de la présence d'un pic étroit dans le spectre du laser (du côté des hautes fréquences). Ces expériences valident complètement l'utilisation de ce dispositif pour réaliser du façonnage de phase spectrale de précision.

**Façonnage en amplitude spectrale** Nous allons maintenant donner quelques exemples de façonnage en amplitude spectrale réalisés avec un masque de phase 2D diffractif. Nous utilisons la loi de calibration en phase du SLM que nous avons déterminée par une méthode interférométrique comme indiqué à la section 1.4.4. Nous employons en outre une méthode itérative pour réussir à atteindre le spectre souhaité. Pour cela nous mesurons le spectre pour une amplitude de réseau de  $2\pi$  puis nous calculons le masque à appliquer pour obtenir le spectre souhaité à partir de l'éq. 1.40. Puis nous itérons cette procédure jusqu'à atteindre le spectre voulu. Le fait qu'il soit utile d'itérer rend compte du fait que la phase appliquée n'est pas exactement la phase programmée. Cet artefact peut provenir d'une erreur sur la loi de calibration ou plus vraisemblablement de l'adressage optique. La Fig. 1.34 montre différents spectres obtenus avec cette procédure après 7 itérations: gaussien (b), en sécante hyperbolique (c), rectangle (d), triangle (e), en dérivée d'une gaussienne (f) ainsi que pour une double impulsion (g) et (h). Les spectres (a) montrent l'effet de la loi de calibration en phase sur le spectre diffracté. La courbe bleue indique le spectre du laser tandis que les courbes verte et rouge montrent les spectres diffractés par le masque de phase, respectivement dans le cas d'une loi de calibration imparfaite - une même loi est utilisée pour toutes les composantes spectrales - et dans le cas d'une loi de calibration adaptée à chaque composante spectrale. Remar-

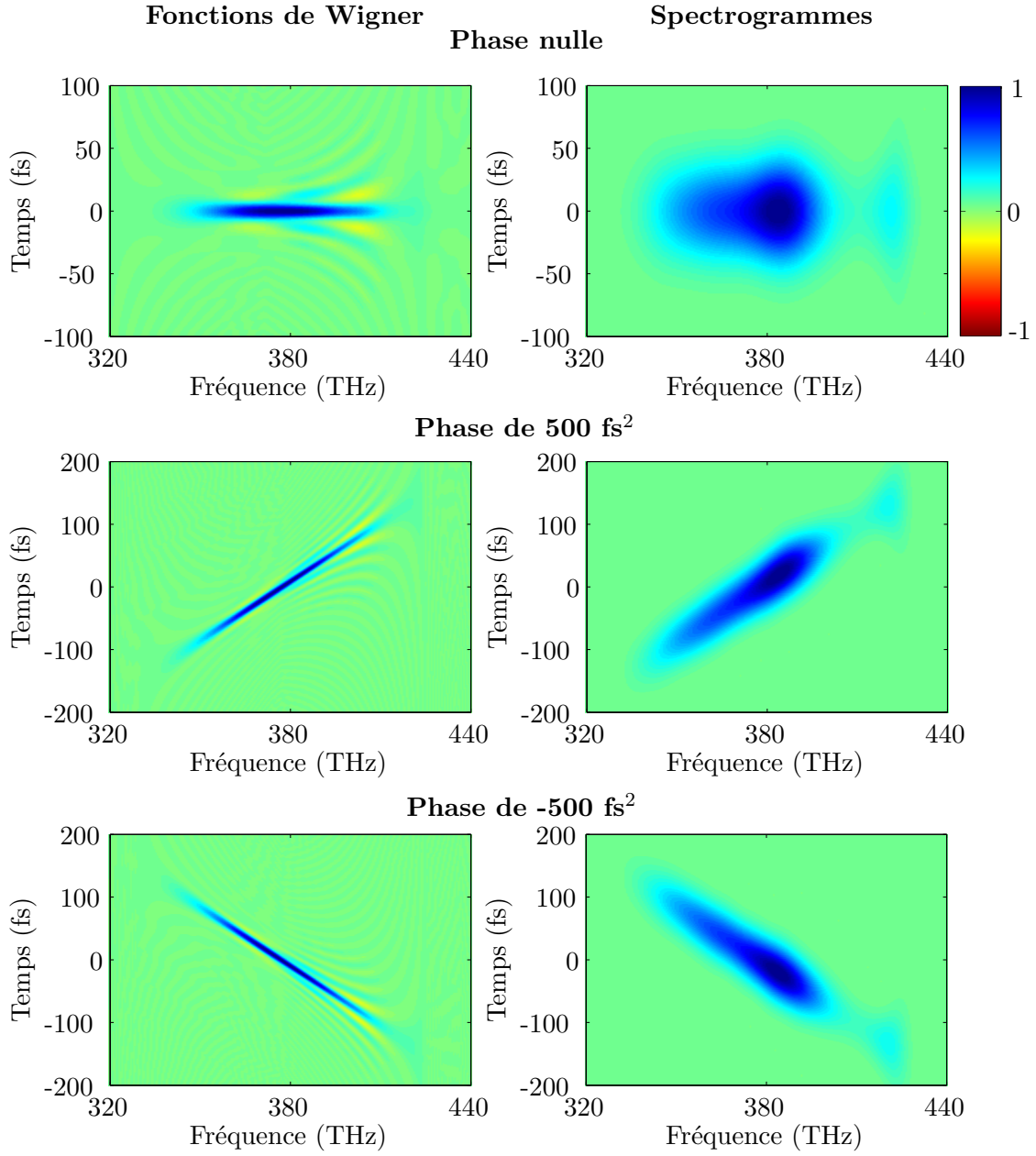


Figure 1.32: Fonctions de Wigner et spectrogrammes des impulsions produites par notre dispositif de façonnage d'impulsions pour une impulsion limitée par transformée de Fourier, une phase quadratique de 500 fs<sup>2</sup> et -500 fs<sup>2</sup>. Ils ont été calculés à partir des spectres et des phases mesurées représentés Fig. 1.30 et 1.31. La porte  $g$  utilisée pour le calcul du spectrogramme est une gaussienne de largeur à mi-hauteur 10 THz.

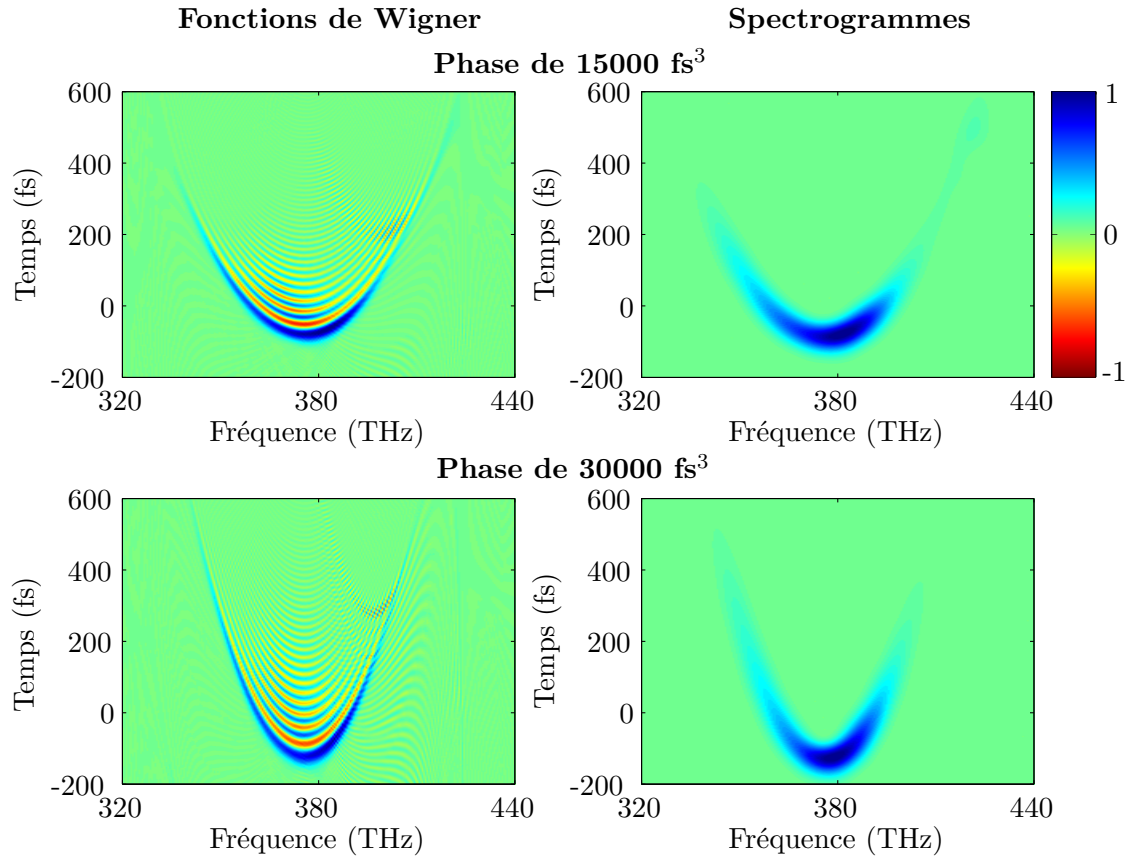


Figure 1.33: Fonctions de Wigner et spectrogrammes des impulsions produites par notre dispositif de façonnage d'impulsions pour une des impulsions dont la phase spectrale est purement du troisième ordre ( $15000 \text{ fs}^3$  et  $30000 \text{ fs}^3$ ). Ils ont été calculés à partir des spectres et des phases mesurées représentés Fig. 1.30 et 1.31. La porte  $g$  utilisée pour le calcul du spectrogramme est une gaussienne de largeur à mi-hauteur 10 THz.

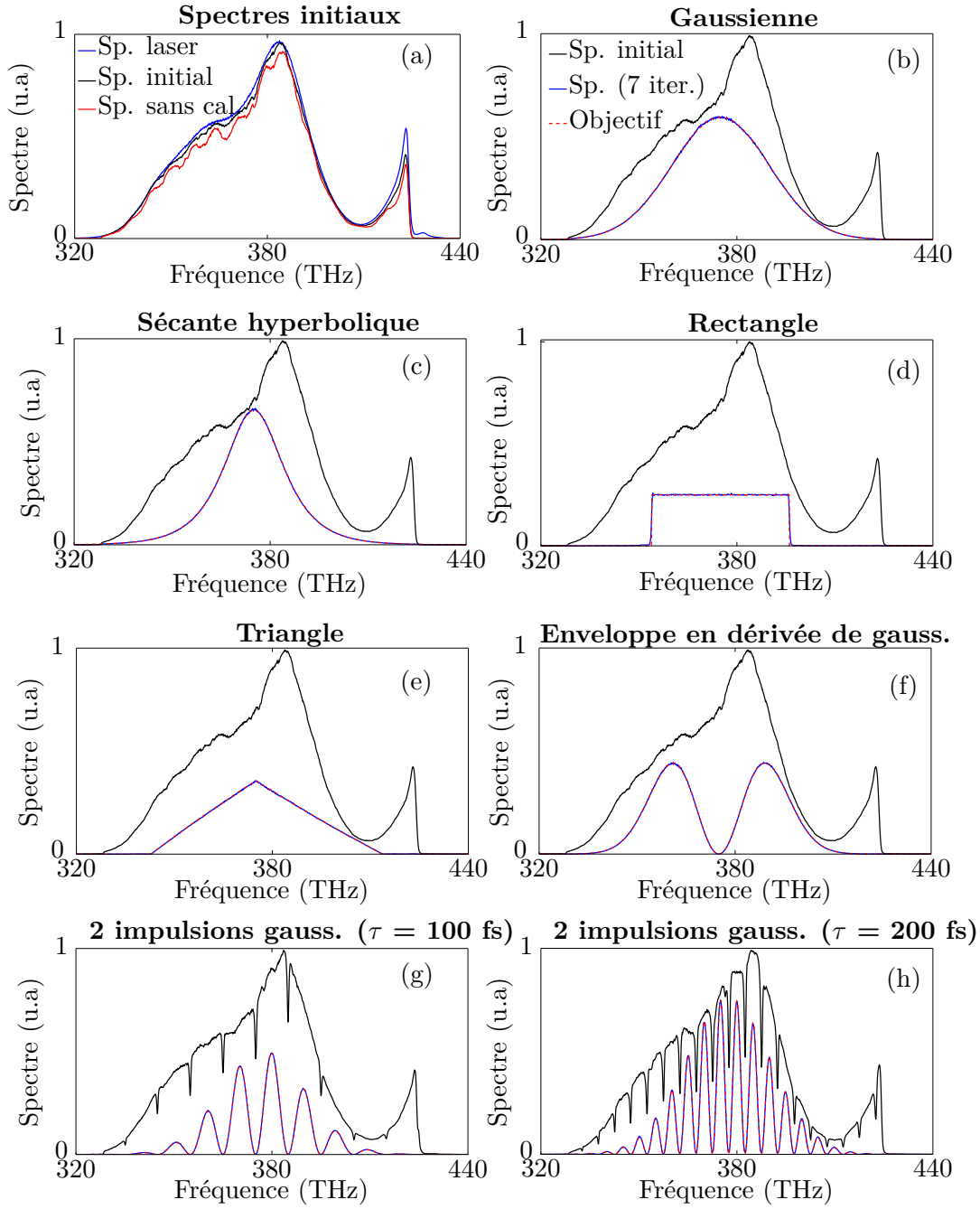


Figure 1.34: Différentes formes de spectres obtenues avec un SLM 2D en mode diffractif. (a) montre l'effet de la loi de calibration sur le spectre diffracté sans masque d'amplitude. La courbe bleue représente le spectre du laser, la courbe rouge le spectre diffracté lorsque la même loi de calibration en phase est employée pour toutes les composantes spectrale et la courbe noire lorsque la loi de calibration mesurée par interférométrie est utilisée. Les autres figures montre les spectres programmés (courbes rouges en pointillés), les spectres initiaux avec application du masque d'amplitude et les spectres obtenus après 7 itérations. On peut distinguer un spectre gaussien (b), en sécante hyperbolique (c), en rectangle (d), en triangle (e), en enveloppe de dérivée gaussienne (f) et pour deux impulsions gaussiennes séparées de 100 fs (g) et 200 fs (h).

quons que le spectre correspondant à une loi de calibration imparfaite est très modulé ce qui montre bien une forte dépendance de la loi de calibration avec la longueur d'onde. Néanmoins, le spectre diffracté comporte encore des modulations qu'on peut attribuer à une loi de calibration en phase qui a changé ou un artefact de l'adressage optique (terme  $B_\alpha(2\pi/P, \omega)$  de l'éq. 1.44).

Pour les autres spectres les courbes en pointillés rouges indiquent le spectre programmé tandis que les courbes bleues représentent les spectres mesurés. Les courbes noires montrent les spectres initiaux, avant d'appliquer le masque d'amplitude. Notons que pour obtenir la forme d'impulsion souhaitée nous commençons par introduire la phase spectrale correspondante, c'est-à-dire le décalage des réseaux qu'il faut, puis nous mesurons le spectre obtenu pour ensuite produire la forme de spectre souhaité. De cette manière on prend en compte l'éventuelle évolution du spectre après application de la phase spectrale tandis que si on procédait de la façon inverse, il serait nécessaire de corriger le masque d'amplitude pour prendre en compte l'évolution du spectre.

Intéressons-nous à la question du couplage entre façonnage en amplitude et façonnage en phase. La Fig. 1.34 montre qu'il y a un excellent accord entre le spectre programmé et le spectre mesuré. Remarquons dans le cas des spectres correspondant à deux impulsions (g) et (h) que les spectres initiaux ont des pics négatifs positionnés aux futurs points d'annulation du spectre. Ces pics résultent de la résolution spectrale finie du dispositif combinée avec un masque de phase qui contient des sauts de phase de  $\pi$ . En effet, pour produire deux impulsions avec un retard  $\tau$ , on doit programmer une fonction de transfert de la forme:

$$R(\omega) \propto \exp(-i\omega\tau/2) + \exp(i\omega\tau/2) \propto \cos(\omega\tau/2) \quad (1.58)$$

Ce qui correspond à un spectre souhaité  $|R(\omega)|^2 \propto \cos^2(\omega\tau/2)$  et une phase spectrale  $\varphi(\omega) = \text{angle}(\cos(\omega\tau/2))$  (où  $\text{angle}()$  est une fonction qui donne l'argument d'une quantité complexe). On voit que les sauts de phase de  $\pi$  correspondent bien aux points d'annulation du masque d'amplitude.

La Fig. 1.35 montre la phase spectrale mesurée par interférométrie spectrale avant (courbe bleue) et après (courbe rouge) avoir appliqué un masque d'amplitude pour

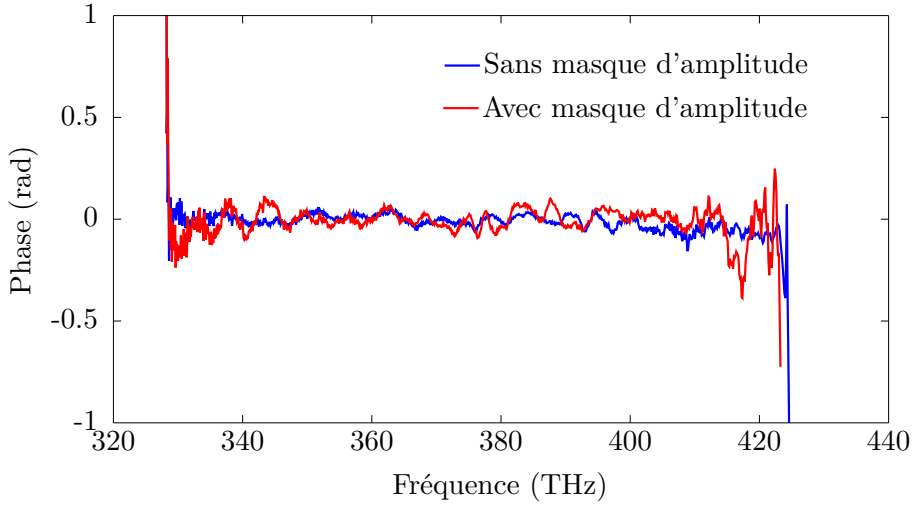


Figure 1.35: Phases spectrales mesurées avant et après application d'un masque d'amplitude gaussienne (Fig. 1.34(b)). L'erreur quadratique moyenne sur le domaine 340-410 THz est de  $3 \cdot 10^{-2}$  rad avant et  $4 \cdot 10^{-2}$  rad après application du masque.

produire un spectre gaussien (Fig. 1.34(b)) avec une phase spectrale nulle. L'erreur quadratique moyenne de ces phase est semblable: elle est de  $3 \cdot 10^{-2}$  rad avant et  $4 \cdot 10^{-2}$  rad après application du masque d'amplitude. Il apparaît donc que la phase spectrale induite par du façonnage en amplitude est bien négligeable lorsque la loi de calibration en phase du SLM est connue.

La Fig. 1.36 montre les fonctions de Wigner et les spectrogrammes d'impulsions produites en faisant à la fois du façonnage en phase et du façonnage en amplitude: une impulsion gaussienne limitée par transformée de Fourier, deux impulsions séparées d'un retard de 200 fs et une impulsion dont l'enveloppe est la dérivée d'une gaussienne. Ces traces ont été produites à partir des spectres mesurés (temps d'intégration 50 ms et moyenné 10 fois) et des phases spectrales extraites par interférométrie spectrale (en supposant l'impulsion incidente limitée par transformée de Fourier). On retrouve les formes de fonctions de Wigner et de spectrogrammes typiques. Remarquons notamment dans le cas de deux impulsions la présence de franges dans la fonction de Wigner à  $t=0$  alors même qu'il n'y a pas d'énergie entre les deux impulsions [28].

Ces expériences valident complètement l'approche de façonnage diffractif. Nous avons vu que le façonnage en phase spectrale peut être très précis alors même que la loi de calibration en phase est imparfaite. Néanmoins, l'adressage optique et / ou la résolution



spectrale finie du dispositif lisse le masque diffractif ce qui a pour effet d'atténuer le spectre dans les zones où la phase est de pente trop forte. Nous avons également déterminé qu'il n'y a pas de phase spectrale significative induite par le façonnage en amplitude lorsqu'on utilise la loi de calibration en phase du SLM résolue en longueur d'onde. Nous avons donc produit des formes d'impulsions variées, fidèles aux formes programmées.

### 1.4.5 Les couplages spatio-temporels

Il existe un artefact commun à tous les façonneurs de type 4f qui couple inévitablement les modifications que l'on opère sur la forme temporelle de l'impulsion avec la distribution transverse du champ électrique. Cet aspect a été largement traité dans la littérature, à la fois expérimentalement [76,77] et théoriquement, par des approches de type optique de Fourier [50,78–82], ou encore par l'utilisation des fonctions de Wigner [83].

#### Approche simplifiée

Ce phénomène trouve son origine dans le fait que la ligne 4f que nous avons considérée dans ce chapitre peut évidemment être considérée comme une ligne 4f au sens de l'optique de Fourier [84]. Ainsi, pour une composante spectrale donnée, le champ dans le plan de Fourier est la transformée de Fourier spatiale du champ à l'entrée du dispositif, au niveau du premier réseau de diffraction. Par conséquent, appliquer un masque en amplitude et en phase dans ce plan, revient aussi à façonner le champ dans l'espace des  $k_x$ . Par exemple, ajouter une phase linéaire dans cet espace aura pour conséquence de décaler le faisceau dans l'espace réel (après la ligne 4f). De même, appliquer une phase localement quadratique revient à induire l'équivalent d'une propagation dont la longueur dépend de la courbure locale et donc de la phase spectrale appliquée. Évaluons en ordre de grandeur le décalage maximal de position transverse pour une composante spectrale donnée. Supposons que le profil du champ est gaussien, de variance  $\sigma_x$  et de phase spatiale nulle au niveau du premier réseau. Dans ce cas, au niveau du plan de Fourier, on obtient la transformée de Fourier du champ en entrée soit une gaussienne de variance  $1/\sigma_x$ , ce qui correspond à une intensité gaussienne de largeur à mi-hauteur  $\frac{2\log 2}{\sigma_x}$ . Supposons que les optiques ont été choisies de façon à adapter la taille des taches focales à environ  $\frac{1}{3}$  de la distance inter-pixel  $\Delta k_x$  [44]. Cela donne  $\Delta k_x \approx \frac{6\log 2}{\sigma_x}$ . De plus, comme la phase maximale que l'on peut appliquer est de  $\pi$  entre deux pixels, cela

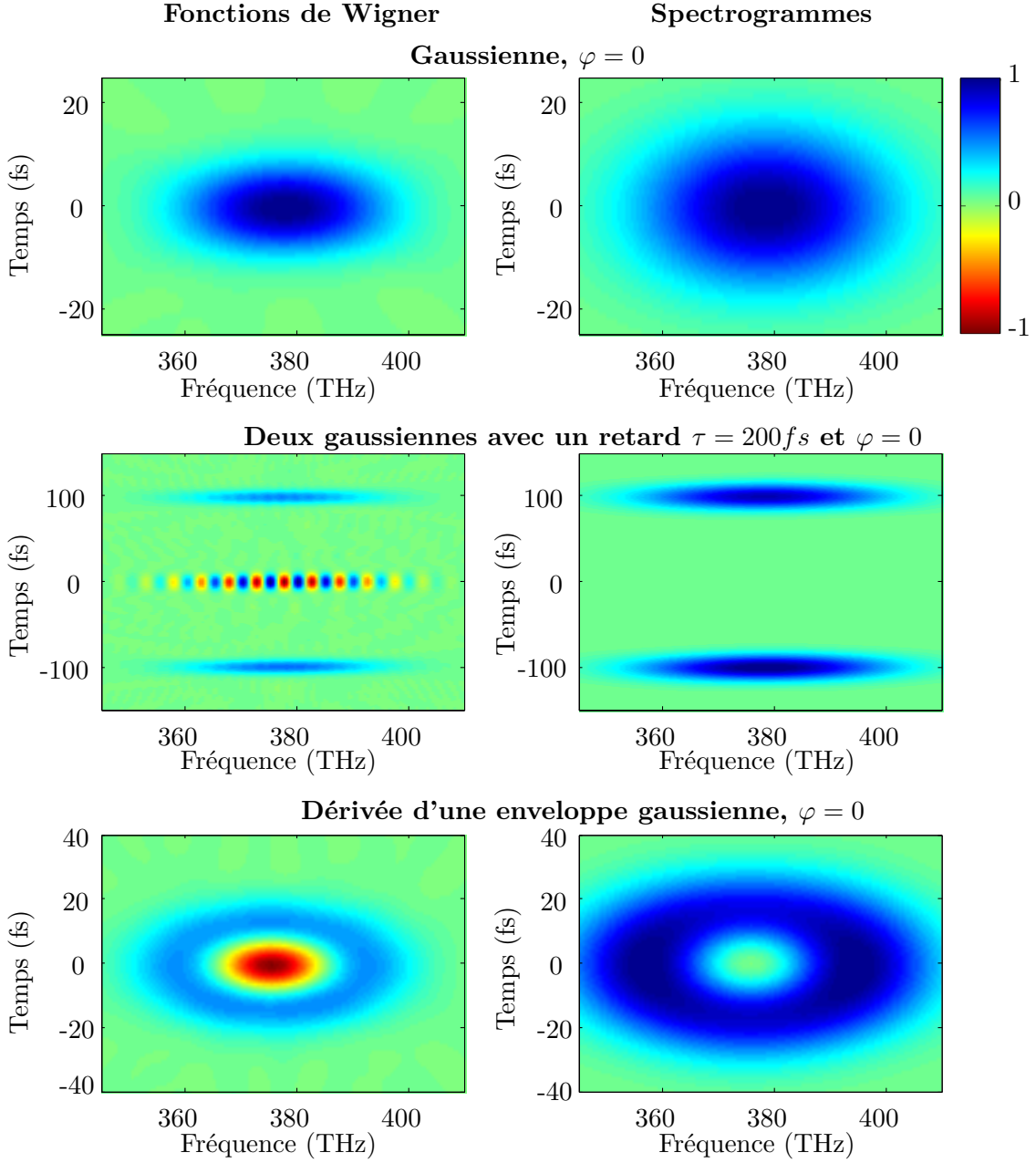


Figure 1.36: Fonctions de Wigner et spectrogrammes des impulsions produites par notre dispositif de façonnage d'impulsions pour: une impulsion gaussienne limitée par transformée de Fourier, deux impulsions séparées d'un retard de 200 fs et une impulsion dont l'enveloppe est la dérivée d'une gaussienne. Ils ont été calculés à partir de spectres mesurés et des phases mesurées par interférométrie spectrale en supposant la phase spectrale de l'impulsion incidente nulle. La porte  $g$  utilisée pour le calcul des spectrogrammes est une gaussienne de largeur à mi-hauteur 30 THz.

revient à imposer une phase linéaire  $\varphi(k_x) = k_x \frac{\pi}{\Delta k_x} = k_x \frac{\pi \sigma_x}{6 \log 2} \approx k_x \sigma_x$ , ce qui donne un décalage maximal du faisceau après passage de la deuxième lentille au niveau du réseau de l'ordre de  $\sigma_x$ . Le décalage maximal du faisceau à cause de cet effet de couplage spatio-temporel est donc de l'ordre de la taille du faisceau entrant.

### Quelques équations

En utilisant les outils de l'optique de Fourier, on peut obtenir une expression relativement compacte du champ en sortie du dispositif, à condition de supposer:

- les champs scalaires (on ne s'intéresse qu'à une seule composante de polarisation);
- les angles suffisamment faibles pour être dans l'approximation paraxiale;
- les lentilles idéales;
- la loi de dispersion des réseaux linéaire en fréquence.

Dans ce cas, on peut montrer que le champ  $\mathcal{E}_{out}$  s'écrit en fonction du champ incident  $\mathcal{E}_{in}$  et du masque complexe appliqué T [79]:

$$\tilde{\mathcal{E}}_{out}(k_x, \omega) \propto \tilde{\mathcal{E}}_{in}(-k_x, \omega) T\left(-\frac{fc}{\omega}(\beta k_x + \gamma(\omega - \omega_0))\right) \quad (1.59)$$

où:

- $\beta = \frac{\cos \theta_i}{\cos \theta_d}$ ,  $\theta_i$  et  $\theta_d$  étant les angles incident et diffracté par les réseaux;
- $\gamma = \frac{2\pi}{m\omega_0 d \cos \theta_{d,0}}$  avec  $\omega_0$  la pulsation centrale,  $d$  le pas du réseau et  $m$  l'ordre de diffraction;
- $f$  est la focale de l'optique convergente (lentille ou miroir);
- $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide;

La position  $x$  du masque est reliée à la pulsation optique par la relation  $x \approx \frac{\gamma fc}{\omega_0}(\omega - \omega_0) = \frac{\Delta x}{\Delta \Omega}(\omega - \omega_0)$ . Le couplage spatio-temporel apparaît ici dans la dépendance du masque avec à la fois la variable de vecteur d'onde  $k_x$  et la variable de pulsation optique  $\omega$ .

**Cas du façonnage en phase spectrale** Nous allons maintenant chercher à expliciter l'effet de ce couplage sur le faisceau en fonction de la phase spectrale souhaitée dans le cas d'un façonnage en phase pur ( $T(x) = \exp(i\varphi(x))$ ), ce qui donne un champ en sortie de la forme:

$$\tilde{\mathcal{E}}_{out}(k_x, \omega) \propto \tilde{\mathcal{E}}_{in}(-k_x, \omega) \times \exp \left[ i\varphi \left( -\frac{fc}{\omega} (\beta k_x + \gamma (\omega - \omega_0)) \right) \right] \quad (1.60)$$

Supposons de plus que l'on introduit une phase spectrale lentement variable de sorte que localement, c'est-à-dire sur la taille de la tache de focalisation, on puisse modéliser la phase par un développement à l'ordre 2 en  $k_x$ , une hypothèse raisonnable dans le cas d'un façonneur non-pixélisé:

$$\begin{aligned} \varphi \left( -\frac{fc}{\omega} (\varepsilon k_x + \gamma (\omega - \omega_0)) \right) &= \varphi \left( -\frac{fc\gamma}{\omega} (\omega - \omega_0) \right) \\ &\quad - \varepsilon k_x \frac{fc\beta}{\omega} \frac{d\varphi}{dx} \Big|_{-\frac{fc\gamma}{\omega} (\omega - \omega_0)} \\ &\quad + k_x^2 \left( \frac{fc\beta}{\omega} \right)^2 \frac{d^2\varphi}{dx^2} \Big|_{-\frac{fc\gamma}{\omega} (\omega - \omega_0)} \end{aligned} \quad (1.61)$$

où  $\varepsilon = +/ - 1$ . En simple passage ( $\varepsilon = 1$ ), pour un façonnage purement en phase, cette expression révèle trois effets de la ligne 4f.

- Le premier terme produit le façonnage de phase spectrale souhaitée  $\phi(\omega)$  telle que:

$$\phi(\omega) = \varphi \left( -\frac{fc\gamma}{\omega} (\omega - \omega_0) \right) \quad (1.62)$$

- Le second terme induit une phase linéaire dans le domaine de Fourier, qui se traduit par un décalage du faisceau dans la direction x d'une quantité  $\Delta X(\omega)$ :

$$\Delta X(\omega) = \frac{fc\beta}{\omega} \frac{d\varphi}{dx} \Big|_{-\frac{fc\gamma}{\omega} (\omega - \omega_0)} \quad (1.63)$$

Or on a:

$$\frac{d\phi}{d\omega} = \frac{fc\gamma\omega_0}{\omega^2} \frac{d\varphi}{dx} \Big|_{-\frac{fc\gamma}{\omega} (\omega - \omega_0)} \quad (1.64)$$

Ce qui donne une expression relativement simple du décalage du faisceau en fonction de la phase spectrale appliquée:

$$\Delta X(\omega) = \frac{\omega\beta}{\omega_0\gamma} \frac{d\phi}{d\omega} \simeq \frac{\beta}{\gamma} \frac{d\phi}{d\omega} \quad (1.65)$$

Le coefficient  $\frac{\beta}{\gamma}$  permet d'évaluer la force du couplage spatio-temporel. Dans notre cas, avec un réseau de 300 traits / mm:  $\frac{\Delta x}{\tau} \simeq 1.25$  mm / ps, soit un décalage maximal du faisceau de l'ordre de 5 mm pour une pente maximale de l'ordre de 3 ps, soit de l'ordre de la taille du faisceau comme nous l'avons évalué par une approche simplifiée.

- Le troisième terme peut s'écrire sous la forme de la phase quadratique accumulée par un faisceau gaussien en propagation libre:

$$k_x^2 \left( \frac{fc\beta}{\omega} \right)^2 \frac{d^2\varphi}{dx^2} \Big|_{-\frac{fc\gamma}{\omega}(\omega-\omega_0)} = -k_x^2 \frac{c}{2\omega} L(\omega) \quad (1.66)$$

avec:  $L(\omega) = -\frac{2c}{\omega} f^2 \beta^2 \frac{d^2\varphi}{dx^2} \Big|_{-\frac{fc\gamma}{\omega}(\omega-\omega_0)}$  la distance de propagation libre équivalente à la phase induite par le SLM. On peut écrire  $L(\omega)$  plus simplement en fonction de la phase spectrale:

$$L(\omega) \simeq 2 \frac{\omega_0}{c} \left( \frac{\beta}{\gamma} \right)^2 \frac{d^2\phi}{d\omega^2} \quad (1.67)$$

Ce troisième terme intervient par conséquent lui aussi dans le couplage spatio-temporel car après un passage dans la ligne 4f, tout se passe comme si les composantes spectrales s'étaient propagées sur des longueurs différentes. Notons que pour ce terme aussi, le coefficient  $\frac{\beta}{\gamma}$  rend compte de la force du couplage spatio-temporel. Dans le cas particulier d'une phase purement quadratique,  $L(\omega) = cste$  ne dépend plus de la pulsation optique et le seul effet du couplage provient du décalage du faisceau (second terme du développement). Il y a une différence de propagation de l'ordre de 7 cm entre les composantes à 700 nm et 900 nm pour une phase cubique pure de 5000 fs<sup>3</sup> à 800 nm (réseau à 300 traits / mm, incidence sur le réseau de 7.5 °).

**Cas du façonnage en amplitude** Comme l'indique l'Eq. 1.59, un façonnage en amplitude spectrale se traduit également par un façonnage de l'amplitude du spectre de fréquences spatiales des composantes spectrales. Pour qu'un façonnage en amplitude affecte le profil spatial d'une composante spectrale, il faut que l'échelle de variation de la modulation soit au moins du même ordre de grandeur que la taille des taches focales. Dans le cas contraire, chaque composante spectrale voit une amplitude de transmission constante, et sa forme de faisceau n'est pas affectée par le façonnage en amplitude. Comme nous utilisons un masque non-pixélisé, nous ne pouvons pas produire de variations extrêmement brutales. Néanmoins, dans les cas les plus extrêmes que nous pouvons produire deux artefacts sont à envisager:

- la divergence du faisceau peut être augmentée car dans le plan de Fourier, la taille du *waist* peut être diminuée, notamment si la résolution optique de la ligne 4f est moins bonne que celle du masque;
- une dispersion angulaire entre les différentes composantes spectrales peut apparaître car dans le plan de Fourier, la position de la tache focale d'une composante spectrale peut être artificiellement décalée (Fig. 1.37). Le décalage maximal étant de l'ordre de la taille du *waist*, la dispersion angulaire est au pire de l'ordre de la divergence du faisceau.

Ainsi, les couplages spatio-temporels introduits par une ligne 4f implémentée avec masque non-pixélisé en simple passage sont de trois types. Tout d'abord le façonnage en phase spectrale introduit un décalage entre les faisceaux des différentes composantes spectrales directement proportionnel à la pente locale de la phase spectrale appliquée. La courbure locale de la phase spectrale introduit aussi un artefact qui peut s'identifier comme une distance de propagation (positive ou négative) additionnelle et proportionnelle à la dérivée seconde de la phase spectrale. Notons que ces deux effets ont en commun un même coefficient de proportionnalité  $\beta/\gamma$  dont la particularité est de ne dépendre que de l'angle d'incidence sur le réseau de diffraction et du pas du réseau. Pour minimiser ces deux effets il suffit donc d'utiliser un réseau de pas minimal et un angle d'incidence maximal. Enfin le troisième effet de couplage spatio-temporel est lié au façonnage en amplitude. Cet effet n'apparaît que dans le cas d'une variation brutale du masque

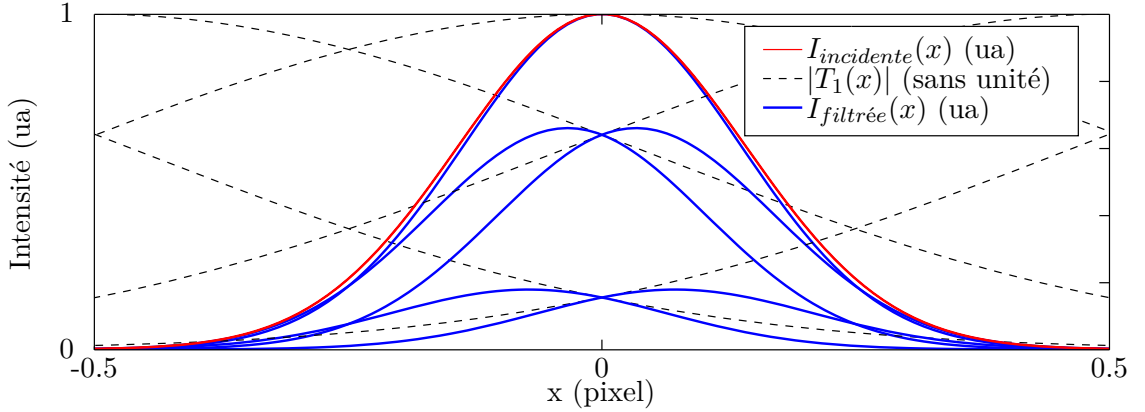


Figure 1.37: Représentation graphique des intensités incidente et filtrées au niveau du plan de Fourier, ainsi que de la transmission correspondante du masque en fonction de la position en pixel. L'intensité incidente est une gaussienne de largeur à mi-hauteur égale à  $\frac{1}{3}$  de la distance inter-pixel [44]. La transmission est la plus brutale possible: elle correspond à un masque d'amplitude nulle, avec un seul pixel de transmission 1 soit un créneau d'amplitude 1 et de largeur 1 pixel. Pour rendre compte de l'effet de lissage de l'adressage optique, la transmission pixélisée a été filtrée par une convolution avec une gaussienne de largeur à mi-hauteur 1 pixel.

d'amplitude, c'est-à-dire sur une distance inférieure à la résolution optique du système réseau-lentille. Dans ce cas, le façonnage en amplitude peut induire un décalage artificiel du centre de gravité des points focaux des composantes spectrales dans le plan de Fourier et cela se traduit après le façonneur par une dispersion angulaire au maximum de l'ordre de grandeur de la divergence du faisceau incident.

### Double passage dans une ligne 4f

Un double passage dans une ligne 4f, en plaçant par exemple un miroir juste après le deuxième réseau, peut sembler être une solution simple pour éliminer totalement les couplages spatio-temporels. Nous allons voir que cela n'est que partiellement vrai. En reprenant l'expression du champ en sortie d'une ligne 4f (Eq. 1.59), et en le réinjectant comme champ d'entrée, on obtient [79]:

$$\tilde{\mathcal{E}}_{out}(k_x, \omega) \propto \tilde{\mathcal{E}}_{in}(k_x, \omega) T\left(-\frac{fc}{\omega}(-\beta k_x + \gamma(\omega - \omega_0))\right) T\left(-\frac{fc}{\omega}(\beta k_x + \gamma(\omega - \omega_0))\right) \quad (1.68)$$

Cette expression révèle que dans le cas général, un double passage ne permet pas de découpler les dimensions spatiales et temporelles. Nous allons voir que les effets du couplage sont néanmoins partiellement compensés dans une configuration à double passage. Pour cela, intéressons nous à un façonnage purement en phase ( $T(x) = \exp(i\varphi(x))$ ), ce qui donne:

$$\begin{aligned} \tilde{\mathcal{E}}_{out}(k_x, \omega) \propto \tilde{\mathcal{E}}_{in}(-k_x, \omega) \times \exp \left[ i\varphi \left( -\frac{fc}{\omega} (-\beta k_x + \gamma (\omega - \omega_0)) \right) \right] \\ \times \exp \left[ i\varphi \left( -\frac{fc}{\omega} (\beta k_x + \gamma (\omega - \omega_0)) \right) \right] \end{aligned} \quad (1.69)$$

On en déduit le champ en sortie dans le cas d'un façonnage purement en phase, avec un double passage dans une ligne 4f à partir du développement de la phase à l'ordre 2 en  $k_x$  (Eq. 1.61):

$$\tilde{\mathcal{E}}_{out}(k_x, \omega) \propto \tilde{\mathcal{E}}_{in}(k_x, \omega) \exp(2i\phi(\omega)) \exp \left( -2ik_x^2 \frac{c}{2\omega} L(\omega) \right) \quad (1.70)$$

avec comme auparavant,  $\phi(\omega)$  la phase spectrale induite par un simple passage et  $L(\omega)$  la longueur de propagation libre équivalente:

$$L(\omega) \simeq 2 \frac{\omega_0}{c} \left( \frac{\beta}{\gamma} \right)^2 \frac{d^2 \phi}{d\omega^2} \quad (1.71)$$

Il apparait qu'après un double passage, le décalage des faisceaux induit par la pente locale de la phase spectrale est totalement compensé. Il reste néanmoins le terme de propagation libre qui a doublé. Dans le cas d'un masque non-pixélisé, on peut en déduire les éléments suivants:

- un double passage dans la ligne 4f permet de s'affranchir du décalage des composantes spectrales;
- les *waists* virtuels des composantes spectrales ne sont plus colocalisés, mais distants de plusieurs centimètres (le double passage a doublé ces distances);
- un double passage nécessite une ligne 4f avec une excellente transmission, dans le cas contraire, cette option est difficilement envisageable. Dans notre cas, nous avons une efficacité de l'ordre de 25% (à l'ordre 1 de diffraction), soit pour un



double passage une efficacité théorique de l'ordre de 6%.

Notons que dans le cas d'un masque pixélisé, les répliques temporelles subissent aussi les effets du couplage spatio-temporel et elles sont donc spatialement décalées par rapport à l'impulsion principale, ce qui permet de les filtrer en grande partie avec un diaphragme. Un double passage ne permet plus ce filtrage et implique de plus, que des répliques sont ramenées autour du retard nul et peuvent interférer avec l'impulsion principale [79].

### Impact sur une expérience de microscopie non-linéaire

**Effet du façonnage en amplitude** Comme nous l'avons décrit à la section 1.4.5, le façonnage en amplitude peut se traduire par une dispersion angulaire entre les différentes composantes spectrales. Après focalisation, cette dispersion se traduit par un décalage des volumes focaux qui ne se superposent plus parfaitement au niveau du foyer de l'objectif de microscope. Cet effet est en réalité totalement négligeable lorsque la transmission varie lentement, c'est-à-dire sur quelques pixels. Seules les composantes spectrales au voisinage des discontinuités sont vraiment impactées: elles sont atténuées et sont focalisées, dans le pire des cas, à un *waist* du volume focal principal.

**Décalage des faisceaux** Les objectifs de microscope sont conçus pour se rapprocher autant que possible d'une lentille parfaite. En d'autres termes des rayons parallèles, même loin de l'axe de la lentille, se focalisent au foyer. Cette propriété a pour conséquence que les faisceaux parallèles mais décalées en provenance de la ligne 4f, se focalisent tous au niveau du foyer. On peut aussi prendre le point de vue de l'optique de Fourier. En effet, le champ au niveau du plan focal après l'objectif de microscope est la transformée de Fourier du champ du plan focal avec l'objectif et dans la mesure où les champs sont tous colinéaires (il n'ont pas de composante linéaire dans leur phase spatiale), alors, par transformée de Fourier, les taches focales sont toutes centrées en  $k_x = 0$ . Cependant, cet effet implique que chaque composante spectrale ne surcouvre pas la pupille arrière du microscope de façon à ce qu'elles soient toutes transmises malgré leur décalage relatif. Or il est indispensable de surcouvrir la pupille arrière d'un objectif de microscope pour exploiter pleinement son ouverture numérique. Cet effet réduit donc *a priori* de façon significative la résolution spatiale d'un microscope multiphoton.

**Défocalisation** La courbure locale de la phase spectrale est à l'origine d'une distance de propagation différente selon la composante spectrale considérée. On note  $L(\omega)$  l'écart entre les *waists* des composantes spectrales (Eq. 1.67). Il est donc pertinent d'estimer la distance entre les différents *waists*, après focalisation. Pour cela, on reprend la formule de conjugaison des faisceaux gaussiens (Eq. 1.55) avec les notations de la Fig. 1.29 pour écrire:

$$d'(\omega) = \frac{f^2 d(\omega)}{d(\omega)^2 + q_0^2} \quad (1.72)$$

La distance  $\delta(\omega)$  entre les points après focalisation s'écrit donc:

$$\delta(\omega) = d'(\omega) - d'_{ref}(\omega) = \frac{f^2 (D + L(\omega))}{(D + L(\omega))^2 + q_0^2} - \frac{f^2 D}{D^2 + q_0^2} \quad (1.73)$$

où  $d'_{ref}(\omega)$  correspond au cas de référence où la phase spectrale appliquée est nulle et D est la distance de référence au *waist* du laser dans ce cas. En prenant  $D=10\text{m}$ ,  $f=2\text{mm}$ ,  $w_0=2\text{mm}$ ,  $\lambda=800\text{nm}$ , on obtient  $\delta(\omega) \approx 0.4\mu\text{m}$ , pour  $100\,000\text{fs}^2$ , sachant que la résolution longitudinale est typiquement de  $2\mu\text{m}$  à ces longueurs d'onde. Par conséquent, dès lors qu'on explore des phases lentement variables, typiquement des phases correspondant à quelques milliers de  $\text{fs}^2$  et  $\text{fs}^3$ , l'impact est négligeable. Néanmoins, il peut devenir important, par exemple pour des phases sinusoïdales de périodes de quelques centaines de fs car dans ce cas,  $L(\omega)$  peut atteindre plusieurs mètres.

Ainsi, les couplages spatio-temporels liés à un façonneur de type 4f ont pour conséquence principale de limiter la résolution spatiale du microscope car on ne peut pas surcouvrir la pupille arrière de l'objectif. De plus, l'utilisation de phases spectrales de très fortes courbures (supérieures à quelques centaines de milliers de  $\text{fs}^2$ ) peut induire une défocalisation non négligeable.

### Un degré de liberté utile: la position du réseau

Comme cela est mentionné dans la Réf. [79], la distance entre le réseau de diffraction et l'optique convergente (lentille ou miroir) peut être un degré de liberté très pratique pour améliorer la dynamique du façonneur. En effet, la ligne 4f à dispersion nulle est l'équivalent d'un étireur à réseaux. En éloignant les réseaux des optiques convergentes,

on introduit une dispersion négative tandis qu'une dispersion positive peut être obtenue en les rapprochant. Commençons par nous intéresser à la modélisation analytique de cet écart par rapport à la ligne à la dispersion nulle. Pour cela, on peut reprendre une description de type Fourier et intégrer la propagation des faisceaux jusqu'aux plans focaux des lentilles. On trouve dans ce cas [76]:

$$\begin{aligned} \tilde{\mathcal{E}}_{out}(k_x, \omega) \propto \tilde{\mathcal{E}}_{in}(-k_x, \omega) T \left( -\frac{fc}{\omega} (\beta k_x + \gamma (\omega - \omega_0)) \right) \\ \times \exp \left[ -i \frac{c(L_1 + L_4)}{2\omega} (\beta k_x + \gamma (\omega - \omega_0))^2 \right] \end{aligned} \quad (1.74)$$

On reprend les notations de longueurs de [76]<sup>3</sup> où  $L_1$  est la distance du premier réseau de diffraction au plan focal objet (comptée positivement lorsque le réseau est avant le plan focal) et  $L_4$  est la distance du second réseau de diffraction au plan focal image (comptée positivement lorsque le réseau est après le plan focal). Dans le cas d'une géométrie repliée, on a  $L_1 = L_4$ . Remarquons que pour une même phase spectrale, purement quadratique, il est totalement équivalent au premier ordre d'appliquer cette phase au niveau du plan de Fourier ou bien de décaler la position des réseaux. Autrement dit, non-seulement le décalage des composantes spectrales est identique mais en plus la phase spatiale quadratique appliquée au niveau du SLM est exactement la même que la phase accumulée (faisceau gaussien) sur une distance  $L_1 + L_4$ . Il apparaît donc qu'on a tout intérêt à utiliser ce degré de liberté pour compenser la dispersion des optiques et ne pas utiliser la dynamique maximale du SLM, qui dans le cas d'un masque diffractif se traduit par un étrécissement du spectre.

Comme tous les façonneurs programmables, la ligne 4f avec un SLM 2D adressé optiquement introduit des couplages spatio-temporels. Néanmoins, contrairement à un masque pixelisé, il peut être opportun d'implémenter un double passage de façon à contrecarrer une partie des couplages, à condition bien sûr, de disposer d'un dispositif suffisamment efficace pour que cette option puissent être envisagée. Nous avons rappelé qu'il était totalement équivalent en terme de couplage spatio-temporel d'utiliser le SLM ou bien la position du réseau de diffraction pour introduire une phase spectrale quadratique. On

<sup>3</sup>Notons que dans cette référence il y a une erreur de signe à l'Eq. (14): il faut remplacer  $L_1$  par  $-L_1$  pour être en accord avec les définitions des longueurs.

privilégiera donc cette dernière approche pour éviter d'utiliser inutilement la dynamique du SLM.

Enfin, les couplages spatio-temporels n'empêchent pas la co-focalisation de toutes les composantes spectrales par un objectif de microscope, néanmoins ils obligent à ne pas surcouvrir la pupille arrière de l'objectif de façon à transmettre toutes les fréquences et peuvent donc dégrader de façon significative la résolution spatiale du microscope.

### 1.4.6 Conclusion

Nous avons montré à la fois théoriquement et expérimentalement la validité d'un masque 2D diffractif adressé optiquement dans une ligne 4f pour réaliser de façon indépendante du façonnage en phase et du façonnage en amplitude spectrales. Nous avons présenté en détail son fonctionnement ainsi que les calibrations indispensables en longueur d'onde et en phase pour produire des formes d'impulsions quelconques. Nous avons étudié les limites de cette approche à la fois théoriquement et expérimentalement, notamment en termes de précision et de dynamique. Nous avons établi qu'un double passage pourrait en théorie éliminer une partie importante des couplages spatio-temporels (le décalage transverse des composantes spectrales). Enfin, les couplages spatio-temporels d'une ligne 4f en simple passage peuvent être à l'origine d'une dégradation de la résolution spatiale du microscope.

# 2 Impulsions façonnées et microscopie non-linéaire

## Sommaire

<b>1.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>13</b>
<b>1.2</b>	<b>Représentation d'une impulsion ultra-brève</b>	<b>13</b>
1.2.1	Notations	14
1.2.2	Fonction de transfert	15
<b>1.3</b>	<b>Les façonneurs historiques</b>	<b>15</b>
1.3.1	Matériaux dispersifs (lentille, lame à faces parallèles etc.)	16
1.3.2	Compresseurs à réseaux et à prismes	18
<b>1.4</b>	<b>Un façonneur programmable: la ligne 4f</b>	<b>25</b>
1.4.1	Principe	26
1.4.2	Montage expérimental	27
1.4.3	Les SLM à cristaux liquides	27
1.4.4	Façonner en amplitude et en phase avec un SLM 2D	35
1.4.5	Les couplages spatio-temporels	69
1.4.6	Conclusion	80

## 2.1 Introduction

Le contrôle cohérent [21, 85–87] est un moyen de manipuler des processus non linéaires spécifiques à travers des interférences entre différents chemins quantiques, par exemple en façonnant l'impulsion excitatrice à l'aide des dispositifs décrits au chapitre 1. La

microscopie non linéaire [1,2] fait partie des nombreux champs d'application de cette approche. En effet, le façonnage d'impulsions rend possible l'excitation sélective d'espèces spécifiques, malgré la largeur spectrale des impulsions excitatrices, grâce à la suppression des chemins quantiques indésirables par des interférences destructives. On peut alors envisager de commuter rapidement entre l'excitation de différentes espèces en changeant la formes des impulsions (excitation multipléxée).

Dans ce chapitre, nous allons tout d'abord rappeler comment le contrôle cohérent de l'absorption à deux photons permet d'implémenter un schéma de microscopie de fluorescence excitée à deux photons sélective puis nous décrirons deux implémentations d'excitations multipléxées que nous avons mises en œuvre dans le cadre de cette thèse.

## 2.2 La microscopie de fluorescence excitée à deux photons

### 2.2.1 L'absorption à deux photons

L'absorption à deux photons est un mécanisme d'interaction entre la lumière et la matière qui, comme représenté Fig. 2.1(a), consiste en l'excitation d'un atome ou d'une molécule depuis son état fondamental vers un état excité par l'absorption simultanée de deux quanta de lumière (photons). Cette excitation du système matériel peut conduire à l'émission d'un photon de fluorescence dont l'énergie est typiquement plus grande que l'énergie des photons d'excitation (Fig. 2.1(b)). Ce phénomène a été prédit dans sa thèse par Maria Göppert-Mayer en 1931 [88] et observé pour la première fois expérimentalement en 1961 dans un cristal d'Europium dopé [89]. La probabilité de collision entre deux photons au niveau d'un atome ou d'une molécule est extrêmement faible et le phénomène nécessite un confinement spatial et temporel intense de l'excitation pour être observé. Ce confinement spatio-temporel des photons peut être obtenu par la focalisation d'un laser femtoseconde (typiquement de 15 à 200fs avec un taux de répétition de l'ordre de 80 MHz) par un objectif de microscope de grande ouverture numérique.

### 2.2.2 Intérêt pour la microscopie

En 1990 Denk *et al.* présentent le premier microscope à deux photons [1]. Cette nouvelle technique de microscopie s'est depuis imposée comme une méthode importante pour l'imagerie de tissus biologiques intacts [2], notamment dans le domaine des neuro-

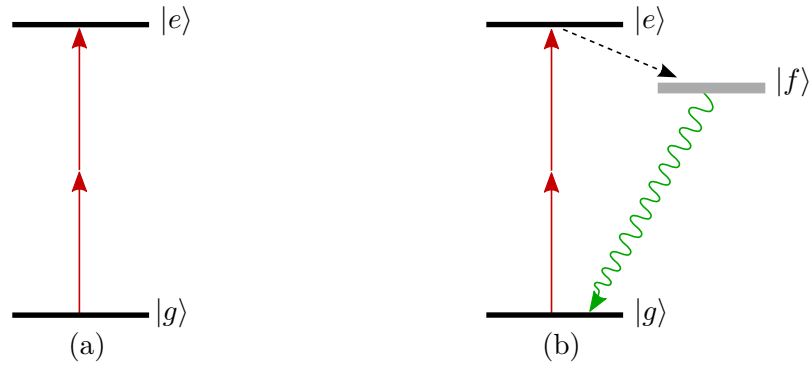


Figure 2.1: (a): Absorption à deux photons. (b): Fluorescence par excitation à deux photons.

sciences [90] ou plus récemment de la biologie du développement [91].

Contrairement à une excitation à un photon, l'excitation à deux photons est confinée dans le volume de focalisation, seul lieu où la densité de photons est suffisante pour que la probabilité d'émission d'un photon de fluorescence soit importante. Ce sectionnement optique intrinsèque permet de produire des images tridimensionnelles avec une résolution micrométrique. La microscopie non linéaire présente au moins trois avantages. Le premier est la profondeur d'imagerie en milieu diffusant du fait de la dépendance quadratique du signal avec l'intensité excitatrice et un confinement de l'excitation relativement bien préservé dans ce type de milieu. De plus, l'utilisation de grandes longueurs d'onde (dans le proche infrarouge) permet d'augmenter la profondeur de pénétration [92]. Typiquement, la profondeur d'imagerie est de plusieurs centaines de micromètres dans les tissus. Le deuxième avantage est que les effets phototoxiques sont réduits en dehors du volume focal. Enfin, un autre intérêt de la microscopie non linéaire est que la fluorescence excitée à deux photons (2-Photon Excited Fluorescence en anglais ou 2PEF) peut en plus être combinée à d'autres mécanismes de contraste non-linéaires qui donnent des informations complémentaires sur l'échantillon. En effet, la génération de seconde harmonique (second harmonic generation en anglais ou SHG) [7, 8], la génération de troisième harmonique [9–11], le mélange à quatre ondes [12, 13], la diffusion Raman anti-Stokes cohérente (coherent anti-Stokes Raman Scattering en anglais ou CARS) [14, 15] ou encore l'émission paramétrique stimulée [93] peuvent donner des informations physiologiques et / ou structurales complémentaires sur les échantillons étudiés et il est donc intéressant de les combiner lorsque cela est possible [11, 16, 17].

### 2.3 Excitation sélective et microscopie 2PEF

#### 2.3.1 Intérêt pour l'imagerie biologique

L'imagerie sélective d'un ensemble de fluorophores comme les protéines fluorescentes (GFP, YFP, etc.) ou encore les espèces endogènes comme NADH dans des conditions standards de vitesse d'acquisition et de résolution présente un intérêt considérable notamment pour des mesures ratiométriques [94] ou spectroscopiques dans des tissus intacts. Dans les expériences d'imagerie rapide, la sélectivité est classiquement obtenue au niveau de la détection où l'on exploite les différences entre les spectres d'émission des fluorophores en utilisant des filtres spectraux adaptés et autant de détecteurs que de fluorophores. Cette approche a ses limites dans la mesure où les fluorophores ont des spectres d'émission qui se recouvrent. L'excitation sélective est donc un degré de liberté supplémentaire que l'on peut exploiter efficacement avec des impulsions à spectre large. Notons que contrôler l'absorption à deux photons par une approche de façonnage d'impulsions ultracourtes présente un véritable avantage par rapport à l'utilisation d'un laser accordable de spectre étroit: la possibilité de basculer rapidement d'une forme d'excitation à une autre tandis qu'un laser accordable nécessite plusieurs secondes pour changer de longueur d'onde centrale. Notre objectif au laboratoire était donc la conception d'un schéma expérimental combinant à la fois un système d'imagerie multiphoton efficace, une vitesse de commutation rapide entre les signaux et une résolution spatiale micrométrique.

#### 2.3.2 Le signal de fluorescence

Commençons par déterminer comment le façonnage d'impulsions permet de sélectionner les fluorophores imagés lors d'une expérience de microscopie. Pour cela, il est nécessaire de s'intéresser à la façon dont le signal de fluorescence est généré.

Le signal de fluorescence  $S$  émis par un fluorophore dépend de la population dans l'état excité  $|e\rangle$  à l'issue de l'impulsion. Cette population est notée  $\rho_{ee} = \langle e|\rho|e\rangle$ , où  $\rho$  est l'opérateur densité du système à l'issue de l'impulsion. Elle peut être calculée en modélisant l'interaction entre le système matériel et le champ incident  $\mathcal{E}(t)$  dans le cadre de l'interaction semi-classique (matière quantique et champ classique), par exemple à l'aide d'un traitement perturbatif de l'équation de Bloch [5, 18, 95]. Dans le cas où il n'y a



pas de niveau intermédiaire résonnant entre l'état fondamental et l'état excité, on peut alors montrer [5, 18, 95, 96] que la population dans l'état excité s'écrit comme l'intégrale de recouvrement suivante:

$$\rho_{ee} \propto \int g_{2PA}^{(2)}(\omega) \left| \mathcal{E}^{(2)}(\omega) \right|^2 d\omega \quad (2.1)$$

où  $g_{2PA}^{(2)}(\omega)$  est le spectre d'absorption à deux photons, que l'on peut exprimer à l'aide des éléments de matrice de l'opérateur dipôle électrique du système [5].  $\mathcal{E}^{(2)}(\omega) = \mathcal{F}^{-1}[\mathcal{E}^{(2)}(t)]$  est la transformée de Fourier inverse de la grandeur

$$\mathcal{E}^{(2)}(t) = \mathcal{E}(t)^2 \quad (2.2)$$

que l'on appellera « champ à deux photons », et qui s'exprime simplement dans le domaine temporel comme le carré du champ incident. On voit qu'il y a une grande similarité avec l'absorption à un photon, à condition de remplacer le champ fondamental par le champ à deux photons, et le spectre d'absorption par le spectre d'absorption à deux photons  $g_{2PA}^{(2)}(\omega)$  [97, 98]. Remarquons toutefois que le signal de fluorescence excité par absorption à deux photons n'est pas directement proportionnel au spectre d'absorption à deux photons, car si l'on prend en compte les degrés de libertés vibrationnels et les couplages possibles vers d'autre niveaux, la relaxation de l'état excité  $|e\rangle$  vers l'état fluorescent  $|f\rangle$  (voir Fig. 2.1) peut dépendre de l'énergie d'excitation. Toutefois, on peut montrer de manière générale que le résultat ci-dessus reste valable pour tout processus non-linéaire d'ordre deux en intensité (donc d'ordre 4 en champ), à condition de supposer qu'il n'y a pas de niveau intermédiaire résonnant [99]. On obtient alors

$$S \propto \int g_{2PEF}^{(2)}(\omega) \left| \mathcal{E}^{(2)}(\omega) \right|^2 d\omega \quad (2.3)$$

où  $g_{2PEF}^{(2)}(\omega)$  est le spectre d'excitation de la fluorescence par excitation à deux photons. Ce spectre peut être mesuré soit en enregistrant le taux de fluorescence en fonction de la fréquence centrale d'un laser quasi monochromatique [100, 101], soit par transformée de Fourier à l'aide d'une séquence de deux impulsions de grande largeur spectrale [22, 102]. Explicitons l'expression du champ à deux photons, en utilisant le fait que la transformée

de Fourier est un produit de convolution:

$$\mathcal{E}^{(2)}(\omega) = \mathcal{F}^{-1} \left[ \mathcal{E}^2(t) \right] = \frac{1}{2\pi} \mathcal{E}(\omega) \otimes \mathcal{E}(\omega) = \int \mathcal{E}\left(\frac{\omega}{2} + \Omega\right) \mathcal{E}\left(\frac{\omega}{2} - \Omega\right) \frac{d\Omega}{2\pi} \quad (2.4)$$

Cette expression indique que des transitions à deux photons vers une fréquence  $\omega$  peuvent avoir lieu pour toutes les paires de photons de fréquence  $\omega_1$  et  $\omega_2$  telles que  $\omega_1 + \omega_2 = \omega$  et tant que  $\omega_1$  et  $\omega_2$  sont dans le spectre du champ incident. De plus, remarquons que le signal de fluorescence dépend directement de la phase spectrale  $\varphi(\omega)$  du champ incident par l'intermédiaire de la forme de l'amplitude du champ à deux photons:

$$\left| \mathcal{E}^{(2)}(\omega) \right|^2 = \left| \int \left| \mathcal{E}\left(\frac{\omega}{2} + \Omega\right) \right| \left| \mathcal{E}\left(\frac{\omega}{2} - \Omega\right) \right| \exp \left[ i \left( \varphi\left(\frac{\omega}{2} + \Omega\right) + \varphi\left(\frac{\omega}{2} - \Omega\right) \right) \right] \frac{d\Omega}{2\pi} \right|^2 \quad (2.5)$$

Cette équation marque une différence fondamentale avec l'absorption à un photon: le signal de fluorescence excitée à deux photons dépend directement de la phase spectrale et pas seulement du spectre du champ incident sur l'échantillon.

### 2.3.3 Contrôler l'absorption à deux photons

Les expériences de contrôle cohérent de l'absorption à deux photons utilisent cette spécificité pour exploiter la phase spectrale comme un nouveau degré de liberté afin de contrôler l'excitation d'un système matériel [18]. Intéressons-nous plus en détail à l'influence de la phase spectrale. Remarquons tout d'abord que d'après l'Eq. 2.5:

$$\left| \mathcal{E}^{(2)}(\omega) \right|^2 \leq \left| \int \left| \mathcal{E}\left(\frac{\omega}{2} + \Omega\right) \right| \left| \mathcal{E}\left(\frac{\omega}{2} - \Omega\right) \right| \right|^2 = \left| \mathcal{E}_{\varphi=0}^{(2)}(\omega) \right|^2 \quad (2.6)$$

L'amplitude du champ à deux photons et donc le signal de fluorescence est maximal pour un champ incident de phase spectrale nulle, c'est-à-dire dans le cas d'une impulsion limitée par transformée de Fourier. Autrement dit, une impulsion limitée par transformée de Fourier excite de façon optimale toutes les transitions à deux photons possibles. Par ailleurs, on voit que si la phase est antisymétrique par rapport à une fréquence donnée  $\omega_1$ , c'est-à-dire  $\varphi(\omega + \omega_1) = -\varphi(\omega - \omega_1)$ , alors l'amplitude du champ à deux photons

est maximal à la fréquence  $2\omega_1$  [18]. En effet:

$$\begin{aligned} \left| \mathcal{E}^{(2)}(2\omega_1) \right|^2 &= \left| \int |\mathcal{E}(\omega_1 + \Omega)| |\mathcal{E}(\omega_1 - \Omega)| \exp \left[ i \underbrace{(\varphi(\omega_1 + \Omega) + \varphi(\omega_1 - \Omega))}_{=0} \right] \frac{d\Omega}{2\pi} \right|^2 \\ &= \left| \mathcal{E}_{\varphi=0}^{(2)}(2\omega_1) \right|^2 \end{aligned} \quad (2.7)$$

A l'inverse, pour des fréquences différentes de  $2\omega_1$ , des interférences destructives peuvent résulter en une décroissance de l'amplitude spectrale du champ à deux photons. Le choix d'une phase antisymétrique appropriée permet donc de produire un spectre à deux photons piqué autour de  $2\omega_1$ , de sorte qu'une excitation sélective peut être obtenue en utilisant la dépendance spectrale du spectre d'excitation 2PEF  $g_{2PEF}^{(2)}(\omega)$ . Plusieurs formes de phases spectrales antisymétriques ont été proposées et mises en œuvre expérimentalement, comme des sinusoïdes [18, 23, 103, 104], des phases spectrales du troisième ordre [68, 103, 105], des phases binaires quasi-aléatoires [106] ou encore des champs de Galois pseudo-aléatoires [107].

Finalement, un schéma efficace de microscopie à deux photons sélective par contrôle cohérent de l'absorption à deux photons consiste à adapter la phase spectrale d'impulsions à spectre large de façon à ce qu'elle soit antisymétrique et à modifier la fréquence d'antisymétrie de cette phase en fonction du fluorophore sélectionné.

#### Interprétation en termes de retards de groupe

Si le retard de groupe varie suffisamment, c'est-à-dire pour une impulsion assez longue, on peut considérer qu'une tranche spectrale arrive à l'instant indiqué par le retard de groupe. De plus, en l'absence de niveau relai, le phénomène d'absorption à deux photons est instantané donc seules des composantes spectrales simultanées pourront interagir. Ainsi, si la phase est antisymétrique par rapport à  $\omega_1$ , alors, le retard de groupe défini comme la dérivée de la phase spectrale (sous-section 1.2.1) est par conséquent symétrique par rapport à cette même fréquence (Fig. 2.2). Dans ce cas, à chaque instant deux composantes spectrales  $\omega_a$  et  $\omega_b = 2\omega_1 - \omega_a$  symétriques par rapport à  $\omega_1$  sont présentes simultanément et peuvent donc se mélanger pour produire une excitation cohérente à la fréquence  $2\omega_1$ . La production d'une excitation à d'autres fréquences dans le spectre à

deux photons est en revanche fortement inhibée du fait de la non simultanéité des deux fréquences requises et ne résulte que du doublage d'une seule composante spectrale.

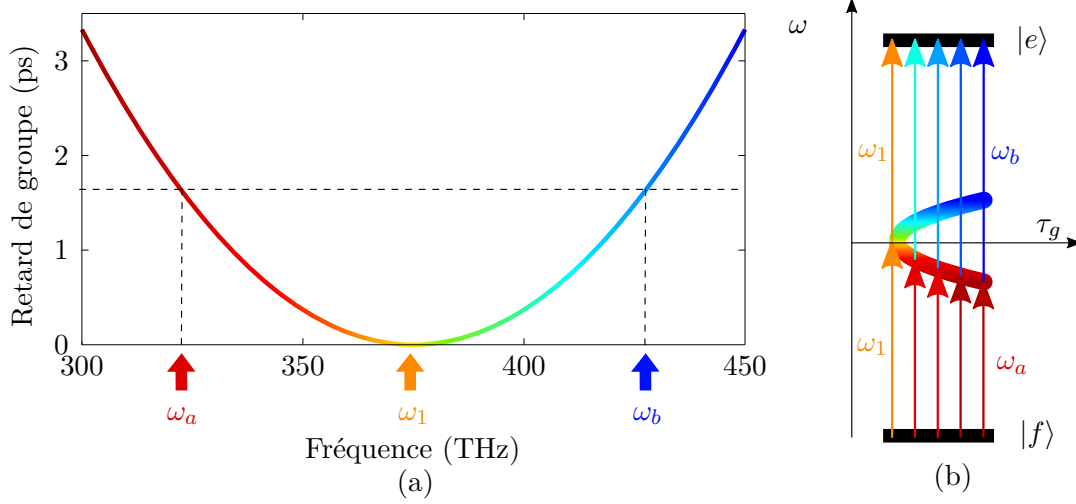


Figure 2.2: (a): Retard de groupe parabolique correspondant à une phase spectrale du troisième ordre centrée à 375 THz et de 30000fs<sup>3</sup>

(b): Représentation schématique du processus d'absorption à deux photons préférentiellement à  $2\omega_1$  avec un retard de groupe parabolique.

### Spectre à deux photons et formes des impulsions

Dans le cas d'une phase antisymétrique, nous ne connaissons *a priori* la valeur de l'amplitude du champ à deux photons qu'au double de la fréquence d'antisymétrie pour laquelle  $|\mathcal{E}^{(2)}(2\omega_1)| = |\mathcal{E}_{\varphi=0}^{(2)}(2\omega_1)|$ . Nous allons chercher à estimer les valeurs du champ pour d'autres valeurs de fréquences à l'aide de la méthode de la phase stationnaire [62, 108]. Commençons par écrire le champ à deux photons sous une forme plus compacte:

$$\mathcal{E}^{(2)}(\omega) = \int a(\Omega) \exp(i\phi(\Omega)) \frac{d\Omega}{2\pi} \quad (2.8)$$

où  $a(\Omega) = |\mathcal{E}(\frac{\omega}{2} + \Omega)| |\mathcal{E}(\frac{\omega}{2} - \Omega)|$  et  $\phi(\Omega) = \varphi(\frac{\omega}{2} + \Omega) + \varphi(\frac{\omega}{2} - \Omega)$ . Supposons qu'il existe une fréquence  $\Omega_0$  unique telle que  $\phi'(\Omega_0) = 0$ , c'est-à-dire pour laquelle la phase est stationnaire. Cette condition implique:

$$\phi'(\Omega_0) = \varphi'(\frac{\omega}{2} + \Omega_0) - \varphi'(\frac{\omega}{2} - \Omega_0) = 0 \quad (2.9)$$

Cette égalité étant évidemment vérifiée pour  $\Omega_0 = 0$ , l'unicité du point de phase stationnaire impose donc  $\Omega_0 = 0$ . Selon la méthode de la phase stationnaire, on peut supposer que seules les valeurs de  $\Omega$  proches de  $\Omega_0$  contribuent à l'intégrale de l'éq. 2.8, car au-delà la somme cohérente de quantités complexes de phases très différentes tend rapidement vers zéro. Dans ce cas, l'amplitude  $a(\Omega)$  peut être supposée constante sur ce voisinage et peut être extraite de l'intégrale:

$$\mathcal{E}^{(2)}(\omega) = a(\Omega_0) \int \exp(i\phi(\Omega)) d\Omega \quad (2.10)$$

On suppose de plus que la phase  $\phi(\omega)$  est suffisamment lentement variable sur ce voisinage pour en faire un développement à l'ordre 2 en  $\Omega$  à la pulsation  $\Omega_0$ :

$$\phi(\Omega) = \phi(\Omega_0) + \frac{\phi''(\Omega_0)}{2}(\Omega - \Omega_0)^2 \quad (2.11)$$

Le terme d'ordre 1 est en effet nul en raison de l'hypothèse de phase stationnaire en  $\Omega_0$ . On en déduit l'expression du champ à deux photons:

$$\begin{aligned} \mathcal{E}^{(2)}(\omega) &= a(\Omega_0) \exp(i\phi(\Omega_0)) \int \exp\left(i\frac{\phi''(\Omega_0)}{2}(\Omega - \Omega_0)^2\right) \frac{d\Omega}{2\pi} \\ &= a(\Omega_0) \exp(i\phi(\Omega_0)) \mathcal{F}\left[\exp\left(i\frac{\phi''(\Omega_0)}{2}(\Omega - \Omega_0)^2\right)\right](t=0) \end{aligned} \quad (2.12)$$

La transformée de Fourier d'une gaussienne complexe a une forme analytique connue et vaut:

$$\mathcal{F}\left[\exp\left(i\frac{\phi''(\Omega_0)}{2}(\Omega - \Omega_0)^2\right)\right](t=0) = \sqrt{\frac{1}{-2\pi\phi''(\Omega_0)}} \exp(i\frac{\pi}{4}) \quad (2.13)$$

Finalement, le spectre du champ complexe s'écrit simplement:

$$\left|E^{(2)}(\omega)\right|^2 \propto \frac{|E(\frac{\omega}{2})|^4}{|\phi''(\frac{\omega}{2})|} \quad (2.14)$$

Cette expression suppose qu'il n'y a qu'un seul point de phase stationnaire et suppose qu'au voisinage de ce point ( $\Omega_0 = 0$ )  $\phi(\Omega)$  est correctement modélisée par un développement à l'ordre 2 ce qui est le cas si la dérive de fréquence locale (terme d'ordre 2 de la

phase spectrale) est suffisamment grande devant les termes d'ordres supérieurs. Notons que nous avons supposé un unique point de phase stationnaire pour simplifier le problème mais qu'il est possible d'étendre le résultat à plusieurs points de phase stationnaire, auquel cas il faut établir les expressions du champ à deux photons au voisinage de ces différents points.

**Cas d'une phase du deuxième ordre** Le cas d'une phase du deuxième ordre permet de mieux comprendre la forme du spectre à deux photons de l'Eq. 2.14. En effet, à condition d'avoir une dérive de fréquence suffisante, il apparaît que le spectre à deux photons est le résultat du doublage de fréquence de chaque composante spectrale individuelle, sans mélange avec les autres. Cela n'est pas étonnant car pour une dérive de fréquence importante, les composantes spectrales ne sont pas présentes simultanément dans l'échantillon (retard de groupe linéaire).

**Cas d'une phase du troisième ordre** Intéressons nous au cas simple d'une phase du troisième ordre (antisymétrique):

$$\varphi(\omega) = \frac{\varphi_3}{6} \times (\omega - \omega_1)^3 \quad (2.15)$$

où  $\varphi_3$  et  $\omega_1$  sont des paramètres ajustables par l'expérimentateur. On en déduit l'expression du spectre de champ à deux photons:

$$\left| \mathcal{E}^{(2)}(\omega) \right|^2 \propto \frac{\left| \mathcal{E}(\frac{\omega}{2}) \right|^4}{\left| \varphi_3 \times (\frac{\omega}{2} - \omega_1) \right|} \quad (2.16)$$

Notons que cette expression diverge en  $2\omega_1$ , fréquence pour laquelle il n'y a pas de point unique de phase stationnaire (car  $\forall \Omega, \phi'(\Omega) = 0$ ). Une phase du troisième ordre permet donc de produire un spectre à deux photons en forme de pic dont la position est réglable par l'intermédiaire de la fréquence d'antisymétrie  $\omega_1$  et la largeur par la quantité  $\varphi_3$ . La Fig. 2.3 représente des spectres simulés par un calcul exact (courbes bleues) pour des phases du troisième ordre pures ( $30000\text{fs}^3$ ) à différentes fréquences (353 THz, 375 THz et 400 THz) ainsi que par l'approche que nous venons de détailler (courbes rouges). On observe un excellent accord en dehors de la fréquence correspondant au point de

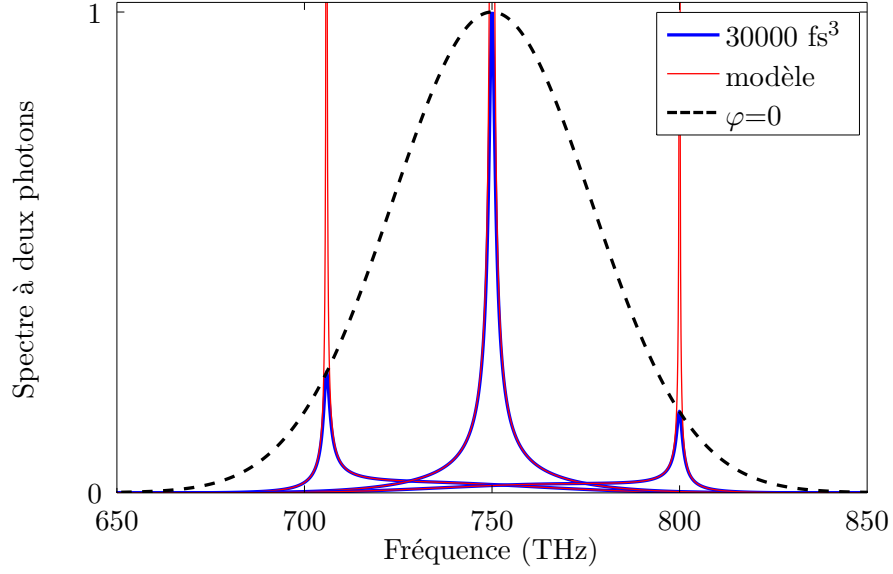


Figure 2.3: Simulations numériques des spectres à deux photons pour une phase nulle (courbe en pointillés) et des phases de  $30000 \text{ fs}^3$  centrées à 353 THz (850 nm), 375 THz (800 nm) et 400 THz (750 nm) par un calcul exact avec la transformée de Fourier (courbes bleues) et par la formule approchée avec l'Eq. 2.16 (courbes rouges).

divergence ( $2\omega_1$ ). A cette fréquence, on connaît déjà l'amplitude du champ à deux photons qui est maximal et correspond à celui d'une impulsion limitée par transformée de Fourier.

**Cas d'une phase sinusoïdale** Prenons le cas d'une phase sinusoïdale de la forme:

$$\varphi(\omega) = \alpha \sin((\omega - \omega_0)\tau + \delta) \quad (2.17)$$

où  $\alpha$ ,  $\tau$  et  $\delta$  sont ajustables par l'expérimentateur. On suppose  $\tau$  choisi suffisamment petit pour qu'il n'y ait qu'un seul point de phase stationnaire sur le support du spectre, c'est-à-dire une demi-période de la fonction sinus. Le spectre à deux photons s'écrit:

$$\left| \mathcal{E}^{(2)}(\omega) \right|^2 \propto \frac{\left| \mathcal{E}(\frac{\omega}{2}) \right|^4}{\left| \alpha \tau^2 \sin\left(\frac{(\omega - \omega_0)}{2} \tau + \delta\right) \right|} \quad (2.18)$$

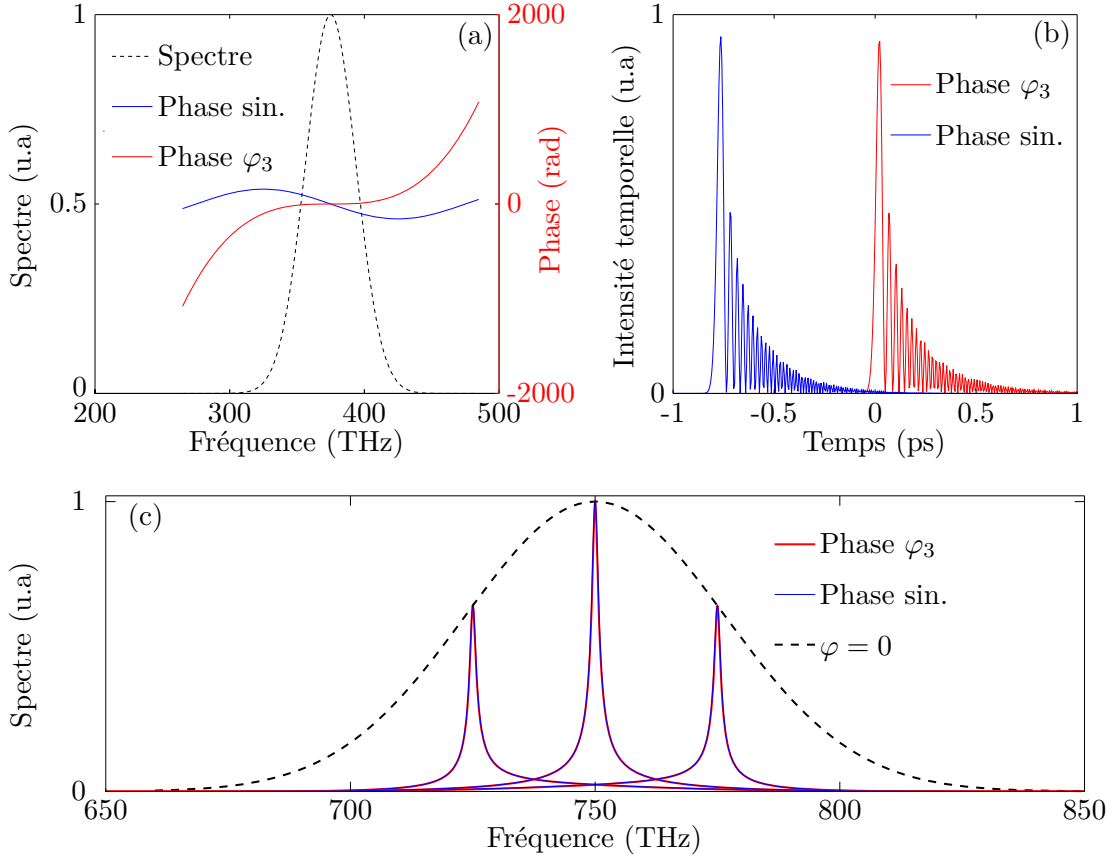


Figure 2.4: Simulations numériques.

(a): Spectre d'une impulsion de 10 fs (à mi-hauteur) et deux phases spectrales produisant un effet équivalent: l'une sinusoïdale ( $\alpha = -50\pi$ ,  $\tau = 5$  fs,  $\delta = 0$ ) et l'autre du troisième ordre ( $\omega_1 = \omega_0$  et  $\varphi_3 = 19600$  fs<sup>3</sup>).

(b): Intensités temporelles correspondant aux spectres et phases de (a).

(c): Spectre à deux photons pour des impulsions décrites en (a) pour  $\delta = -\frac{\pi}{8}$ ,  $0$ ,  $\frac{\pi}{8}$  et pour une impulsion limitée par transformée de Fourier de même spectre.

Au voisinage du pic, on peut faire un développement au premier ordre de la fonction sinus:

$$\left| \mathcal{E}^{(2)}(\omega) \right|^2 \propto \frac{\left| \mathcal{E}\left(\frac{\omega}{2}\right) \right|^4}{\left| \alpha \tau^3 \times \left( \frac{\omega}{2} - \left( \frac{\omega_0}{2} - \frac{\delta}{\tau} \right) \right) \right|} \quad (2.19)$$

On en déduit qu'une phase sinusoïdale de grande période produit le même spectre à deux photons qu'une phase du troisième ordre pure à condition de prendre  $\varphi_3 = \alpha \tau^3$  et  $\omega_1 = \frac{\omega_0}{2} - \frac{\delta}{\tau}$ . La Fig. 2.4(c) représente une simulation des spectres à deux photons calculés par l'approche exacte pour des phases sinusoïdales et du troisième ordre dont les paramètres ont été ajustés pour qu'elles produisent le même spectre à deux photons. La



Fig. 2.4(a) représente les phases spectrales que nous avons utilisées pour cette simulation numérique. Les deux phases ont des formes très proches, à un terme linéaire près, ce qui se traduit dans le domaine temporel par deux impulsions quasiment identiques et décalées. Notons que la phase sinusoïdale et la phase du troisième ordre ne diffèrent de façon significative qu'en bord de spectre où il y a peu d'énergie. Néanmoins, la phase sinusoïdale est plus facile à mettre en œuvre avec un façonneur de type 4f car c'est une phase bornée, contrairement à la phase du troisième ordre qui diverge. Dans les expériences décrites dans la suite, nous avons toutefois fait le choix d'utiliser des phases du troisième ordre car nous anticipions une utilisation future d'éléments dispersifs pour produire cette même phase.

Enfin, remarquons que la modélisation de sinusoïdes de plus hautes fréquences nécessiterait de déterminer les différents points de phase stationnaires afin de déduire la forme du spectre à deux photons par morceaux.

**Façonnage en amplitude** Utiliser la phase spectrale peut sembler compliqué alors qu'il suffirait *a priori* de réduire la taille du spectre incident (avec une phase spectrale nulle) afin de contrôler la largeur et la position du pic correspondant au spectre à deux photons. Cela est tout à fait juste mais l'amplitude du spectre à deux photons est alors très faible. La raison en est simple: en faisant du façonnage en amplitude, on perd une grande partie des photons qui auraient pu participer au processus d'absorption à deux photons à la fréquence que l'on cherche à exciter. La Fig. 2.5 représente le résultat de simulations numériques de spectres à deux photons pour différents spectres fondamentaux avec une phase spectrale nulle. Comme attendu, on peut voir que le façonnage en amplitude ne permet pas de produire un spectre à deux photons piqué au centre du spectre suffisamment intense pour envisager une expérience de microscopie (courbes bleues). En revanche, en ne conservant que les bords du spectre fondamental (courbes rouge et bleue), il est possible de produire des spectres à deux photons larges mais de supports disjoints. Il peut donc être intéressant dans certains cas, notamment en bord de spectre, d'utiliser le façonnage en amplitude, voire de le coupler à du façonnage en phase pour moduler de façon optimale le spectre à deux photons. Notons que ces simulations numériques donnent des spectres à deux photons tout à fait similaires à ceux

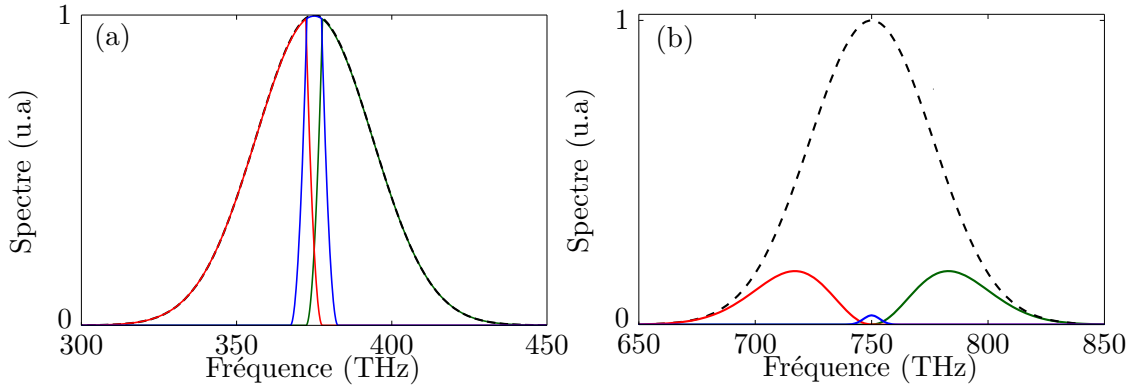


Figure 2.5: Simulations numériques de spectres à deux photons dans le cas d'un façonnage purement en amplitude (avec une phase spectrale nulle).

(a): les spectres fondamentaux.

(b): les spectres à deux photons correspondant aux spectres fondamentaux de même couleur.

mesurés par Comstock *et al.* [106]. Il est aussi possible d'obtenir le même résultat par une approche en phase. En effet, on peut déterminer une forme de phase qui minimise le processus d'absorption à deux photons, par exemple avec une phase binaire adaptée [104, 109], de façon à l'utiliser localement pour supprimer complètement la contribution d'une partie du spectre.

### 2.3.4 Forme d'impulsion optimale

Notre objectif est d'imager avec la meilleure sélectivité possible et un bon rapport signal à bruit un ensemble de fluorophores donné avec un système d'imagerie à deux photons couplé à un dispositif de façonnage d'impulsions. Pour cela, il est nécessaire de se doter d'un critère d'optimisation de façon à déterminer la forme d'impulsion optimale. Il existe deux types de stratégie pour identifier la forme d'impulsion optimale contrôlant un processus photoinduit. Une première approche, suggérée par Judson et Rabitz [110] en 1992, consiste à utiliser une procédure d'apprentissage en boucle fermée basée sur un algorithme génétique. La première implémentation en 1998 par l'équipe de Gerber [111] pour forcer une voie de réaction chimique photo-induite a ouvert la voie à de nombreuses expériences: le contrôle de réactions moléculaires en phase gazeuse [112] et condensée [113], la génération d'harmoniques d'ordre élevé [114] mais aussi le contrôle de processus biophysiques fondamentaux [115]. Dans le cas de la microscopie à deux photons sélective, on souhaite typiquement optimiser le signal d'un fluorophore spécifique

par rapport à un autre avec des spectres d'absorption à deux photons qui se recouvrent. Un critère d'optimisation possible est le rapport des signaux de fluorescence relatifs aux deux fluorophores ainsi qu'un terme proportionnel au signal à optimiser pour éviter des signaux trop faibles [116]. On peut employer un algorithme génétique avec un seul objectif à maximiser [117] ou alors à plusieurs objectifs en parallèle [116, 118]. L'autre approche, dite en boucle ouverte, consiste à modéliser le système de façon à déterminer avant l'expérience la forme optimale des impulsions [18, 119–121]. Dans le cas du contrôle cohérent de l'absorption à deux photons pour la microscopie sélective, il suffit de connaître les spectres d'absorption à deux photons des fluorophores afin de déterminer, à spectre du laser donné, l'amplitude et la phase optimale [22]. Notons néanmoins que, comme dans le cas de l'optimisation en boucle fermée, il est aussi nécessaire d'arbitrer entre le niveau de signal et la force du contraste entre les fluorophores tout en prenant en compte que les concentrations des différents fluorophores peuvent être très différentes.

### 2.3.5 Conclusion

Nous avons donc déterminé que pour réaliser une expérience de microscopie sélective à l'excitation, il était nécessaire de contrôler la forme du spectre à deux photons. Pour cela, nous avons mis l'accent sur la dépendance de la forme du spectre à deux photons avec la phase spectrale des impulsions, étant donné que le façonnage en amplitude est très peu efficace. Nous avons montré qu'une forme de phase antisymétrique par rapport à une fréquence permettant de produire un spectre à deux photons piqué dont la largeur et la position du pic étaient réglables, par exemple avec une phase sinusoïdale ou une phase du troisième ordre. Pour pouvoir contrôler la phase spectrale aussi finement au niveau de l'échantillon, il est donc nécessaire de pouvoir caractériser la forme des impulsions au foyer de notre objectif de microscope. Il est aussi utile de pouvoir contrôler directement la forme du spectre à deux photons obtenue au niveau du foyer de l'objectif. Ces deux aspects font l'objet de la section suivante.

## 2.4 Les méthodes de mesure au foyer d'un objectif

Il existe de très nombreuses méthodes de caractérisation des impulsions femtosecondes. Pour une étude exhaustive des ces techniques, on peut se référer à l'article de revue de

Walmsley et Dorrer [122], ou plus récemment à celui de de Monmayrant, Weber et Chatel [122]. Nous nous intéressons ici aux techniques de caractérisation compatibles avec une mesure au foyer d'un objectif de microscope et qui ne nécessitent pas une impulsion de référence de forme connue.

Deux techniques de caractérisation complète des impulsions utilisant des effets non linéaires sont largement utilisées : FROG (frequency-resolved optical gating en anglais) [123, 124] et SPIDER (spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction) [125]. Ces méthodes utilisent le plus souvent la génération de seconde harmonique comme effet non-linéaire car ce processus présente l'avantage d'être très efficace. S'il existe de très nombreuses variantes de FROG [126] et SPIDER [127], seules certaines d'entre elles sont compatibles avec une mesure au foyer d'un objectif de microscope dont la forte focalisation impose une géométrie utilisant des faisceaux colinéaires.

SPIDER est une technique inspirée de l'interférométrie spectrale mais où l'impulsion de référence est une version décalée spectralement de l'impulsion à mesurer [127]. C'est une technique non-itérative et donc relativement rapide. Il existe des variantes de SPIDER permettant une mesure au foyer d'un objectif de microscope [128–130]. Leurs implémentations expérimentales reposent souvent sur un façonneur d'impulsions utilisant du façonnage en phase et amplitude [129, 131, 132] ou bien du façonnage purement en phase [130, 133].

Il existe aussi des variantes de FROG compatibles avec une caractérisation au foyer d'un objectif de microscope. Ces variantes reposent sur la mesure des spectres de SHG produits par deux répliques de l'impulsion à mesurer pour différents retards. La forme de l'impulsion est ensuite extraite des données par l'utilisation d'un algorithme itératif [134–136]. On peut distinguer deux variantes de FROG pour la mesure au foyer d'un objectif: la première, FROG colinéaire, repose sur l'utilisation d'un cristal doubleur de type II [137] et l'autre, FROG interférométrique, repose sur un cristal de type I [138–140]. Pour la caractérisation d'impulsions à spectre très large, on privilégie souvent les cristaux doubleur de type I moins contraignant en terme d'accord de phase [141]. Remarquons que le FROG interférométrique a lui-aussi été implémenté avec des façonneurs d'impulsions [132, 142].

Il existe aussi des techniques, moins répandues, qui ne peuvent être implémentées qu'avec

des façonneurs d'impulsions. L'approche la plus simple consiste à utiliser un algorithme génétique combiné à une mesure d'autocorrélation de second ordre pour annuler la phase spectrale [143, 144]. Une autre méthode, beaucoup plus rapide, appelée balayage de la dérive de fréquence (multiphoton intrapulse interference phase scan en anglais ou MIIPS), consiste à ajouter différentes phases connues à la phase spectrale à caractériser puis à mesurer les spectres à deux photons correspondant à la nouvelle forme d'impulsion [145–148]. On extrait ensuite la phase spectrale inconnue directement de la trace mesurée. Cette technique nécessite toutefois quelques itérations pour parfaitement déterminer la phase spectrale.

### 2.4.1 Choix des techniques de caractérisation

Dans la suite nous allons détailler les méthodes que nous avons retenues pour la caractérisation des impulsions au foyer de l'objectif.

Nous avons tout d'abord implémenté un autocorrélateur de façon à mesurer la durée des impulsions au foyer de notre objectif de microscope. Il s'agit d'une mesure très parcellaire et il a donc été nécessaire de se doter de méthodes plus complètes de caractérisation.

Pour cela, deux situations expérimentales sont à considérer: les configurations où nous utilisons le façonneur d'impulsions programmable et celles où il est absent. Lorsqu'il est présent dans le montage expérimental, pour une expérience de microscopie par exemple, il est tout à fait pertinent de l'utiliser pour caractériser les impulsions au foyer. Pour déterminer quelle approche est la plus adaptée à notre façonneur, rappelons qu'il peut faire à la fois du façonnage en phase et en amplitude mais que si produire une phase spectrale fidèle ne nécessite qu'une itération, ce n'est pas le cas du façonnage en amplitude qui en nécessite plusieurs. C'est la raison pour laquelle nous avons privilégié les méthodes ne nécessitant que du façonnage en phase. Les méthodes de mesure les plus directes (sans algorithme itératif) sont certainement les variantes de SPIDER et la balayage de la dérive de fréquence. Nous avons opté pour cette dernière car la variante de SPIDER utilisant du façonnage purement en phase nécessite de produire des sauts de phase abruptes [130, 133], ce que notre façonneur adressé optiquement ne produit pas

de façon optimale.

Enfin, dans les cas où nous ne disposons pas du façonneur d'impulsions, nous avons opté pour le FROG interférométrique [138–140] qui ne demande que l'implémentation d'un interféromètre et utilise un cristal de type I moins sensible à l'accord de phase qu'un cristal de type II [141].

### 2.4.2 Mesure de la durée des impulsions

Nous utilisons ici une des techniques les plus anciennes de caractérisation de la durée des impulsions par la mesure de la fonction d'autocorrélation du second ordre (AC) des impulsions [149, 150] au foyer de l'objectif du microscope. Le principe de cette mesure repose sur l'utilisation d'un interféromètre pour créer deux répliques de l'impulsion à mesurer et à les co-focaliser dans un milieu non-linéaire d'ordre 2. On enregistre le signal non-linéaire en fonction du retard  $\tau$  entre les impulsions. L'utilisation d'un objectif de microscope dans notre cas impose une géométrie où les faisceaux émergeant de l'interféromètre sont colinéaires et parfaitement superposés ce qui implique que nous mesurons une autocorrélation du second ordre interférométrique (ACI) [151–153]. Deux effets non-linéaire d'ordre 2 peuvent être envisagés: la génération de seconde harmonique [149–152] ou bien l'absorption à deux photons dans une photodiode [154]. Nous préférons l'utilisation d'une photodiode GaAsP car sa réponse spectrale est relativement constante sur le spectre de notre laser [154], contrairement à l'utilisation d'un cristal doubleur dont la réponse spectrale peut être limitée par les problèmes d'accord de phase [141]. Pour cette mesure, nous avons construit un interféromètre de type Mach-Zender représenté Fig. 2.6 qui permet de produire deux impulsions identiques ( $\mathcal{E}_{MZ}(t) = \mathcal{E}(t) + \mathcal{E}(t - \tau)$ ), avec pour chacune des répliques une même épaisseur de lame séparatrice traversée et un même nombre de réflexions et transmissions à travers ces lames. Le retard  $\tau$  entre les impulsions peut être balayé grâce à une platine de translation piézoélectrique placée dans l'un des bras de l'interféromètre. La sortie principale de l'interféromètre est envoyée vers le microscope de façon à focaliser les impulsions dans une photodiode GaAsP intégratrice dont on mesure le photocourant induit par un processus d'absorption à deux photons dans le semi-conducteur en fonction du retard. Pour mesurer précisément le retard par une technique optique on peut utiliser une source dont

## 2.4. Les méthodes de mesure au foyer d'un objectif

le temps de cohérence est suffisamment long, c'est-à-dire de spectre suffisamment étroit, couplée dans l'interféromètre de façon à enregistrer sa fonction d'autocorrélation du premier ordre avec une photodiode intégratrice. Notons  $\mathcal{E}_{réf}(t) = \mathcal{A}_{réf}(t) \exp(-i\omega_{réf}t)$  le champ produit par cette source à spectre étroit et de fréquence centrale  $\omega_{réf}$ . Sa fonction d'autocorrélation s'écrit:

$$S_1(\tau) \propto Cst + 2\text{Re} \left\{ \mathcal{F} \left[ |\mathcal{A}_{réf}(\omega)|^2 \right] \exp(-i\omega_{réf}\tau) \right\} \quad (2.20)$$

Notons que le contraste des franges d'interférence est modulé par la fonction  $\mathcal{F} \left[ |\mathcal{A}_{réf}(\omega)|^2 \right]$ . Si on suppose le spectre de la source de profil gaussien, sa largeur mi-hauteur s'écrit:  $\frac{4 \log 2 \lambda_{réf}}{\pi c \Delta \lambda}$  où  $\lambda_{réf}$  est la longueur d'onde centrale de la source et  $\Delta \lambda$  la largeur à mi-hauteur de son spectre. On peut extraire le retard  $\tau$  du signal  $S_1$  par exemple avec un traitement de Fourier du même type que celui employé pour l'interférométrie spectrale en connaissant la fréquence centrale  $\omega_{réf}$  de cette source. On peut distinguer deux sources à spectre étroit relativement simples à mettre en place: l'utilisation d'un laser Helium-Néon dont le faisceau est parfaitement co-propagatif avec les faisceaux à 800 nm [153], ou bien le laser à spectre large lui-même sur lequel on effectue un filtrage spectral [155]. Pour notre montage nous avons opté pour la deuxième option dont l'avantage est de parfaitement rendre compte des fluctuations du chemin optique. Pour opérer le filtrage spectral nous avons construit un spectromètre avec un réseau de diffraction et une lentille. Nous avons sélectionné la composante spectrale utilisée avec un trou placé dans le plan focal de la lentille et nous l'avons envoyée vers une photodiode intégratrice (Silicium). Intéressons-nous au signal mesuré par la photodiode GaAsP. Tout comme la fluorescence excitée à deux photons (section 2.3.2), le photocourant induit par l'absorption à deux photons dans la photodiode est un processus non linéaire d'ordre 2 en intensité et on peut montrer, à condition de supposer qu'il n'y a pas de niveau intermédiaire résonnant [99], que le signal mesuré par la photodiode à deux photons s'écrit:

$$S_2(\tau) \propto \int \underbrace{g_{photodiode}^{(2)}(\omega)}_{\approx 1} \left| \mathcal{E}_{MZ}^{(2)}(\omega) \right|^2 d\omega \approx \int \left| \int (\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}(t - \tau))^2 \exp(i\omega t) dt \right|^2 d\omega \quad (2.21)$$

où  $g_{photodiode}^{(2)} \approx 1$  est le spectre d'excitation à deux photons du signal de la photodiode, supposé constant sur le support du spectre du laser. Nous reconnaissons ici l'autocorrélation du second ordre interférométrique (ACI) que nous souhaitons mesurer. De plus, en prenant la normalisation suivante:

$$\int |\mathcal{E}(t)|^4 dt = 1 \quad (2.22)$$

l'expression du signal mesuré devient [153]:

$$S_2(\tau) \propto 1 + 2G_2(\tau) + 4\text{Re}[F_1(\tau)] + \text{Re}[F_2(\tau)] \quad (2.23)$$

avec :

- $G_2(\tau) = \int I(t)I(t-\tau)dt$  l'autocorrélation du second ordre de l'intensité  $I(t) = |\mathcal{E}(t)|^2$ ;
- $F_1(\tau) = \frac{1}{2} \int [I(t) + I(t-\tau)] \mathcal{E}(t)\mathcal{E}^*(t-\tau)dt$  un terme oscillant à la fréquence centrale  $\omega_0$ ;
- $F_2(\tau) = \int \mathcal{E}^{(2)}(t)\mathcal{E}^{(2)*}(t-\tau)dt$  l'autocorrélation du champ à deux photons, un terme oscillant à la fréquence  $2\omega_0$ .

Ces termes étant modulés à différentes fréquence, l'analyse de Fourier permet de les séparer facilement. Remarquons que le troisième terme (modulé à  $2\omega_0$ ) donne directement le spectre à deux photons par une simple transformée de Fourier. Une mesure d'ACI avec une photodiode à deux photons permet donc à la fois d'extraire l'AC pour caractériser la durée des impulsions mais aussi le spectre à deux photons qui, comme nous l'avons vu à la section 2.3 est la grandeur pertinente pour une expérience de microscopie 2PEF. La Fig. 2.7(a) représente une ACI mesurée avec le montage décrit Fig. 2.6 ainsi que l'AC extraite par filtrage de Fourier. Remarquons que le rapport entre le maximum et la ligne de base de l'ACI atteint presque la valeur théorique de 8, ce qui indique un bon coalignement deux temps faisceaux de l'interféromètre. La largeur à mi-hauteur de l'impulsion  $\Delta t$  est reliée à la largeur à mi-hauteur de l'AC  $\Delta t_{AC}$  par la relation suivante  $\Delta t = \Delta t_{AC}/\sqrt{2}$ , en faisant l'hypothèse d'une impulsion de profile gaussien. L'AC



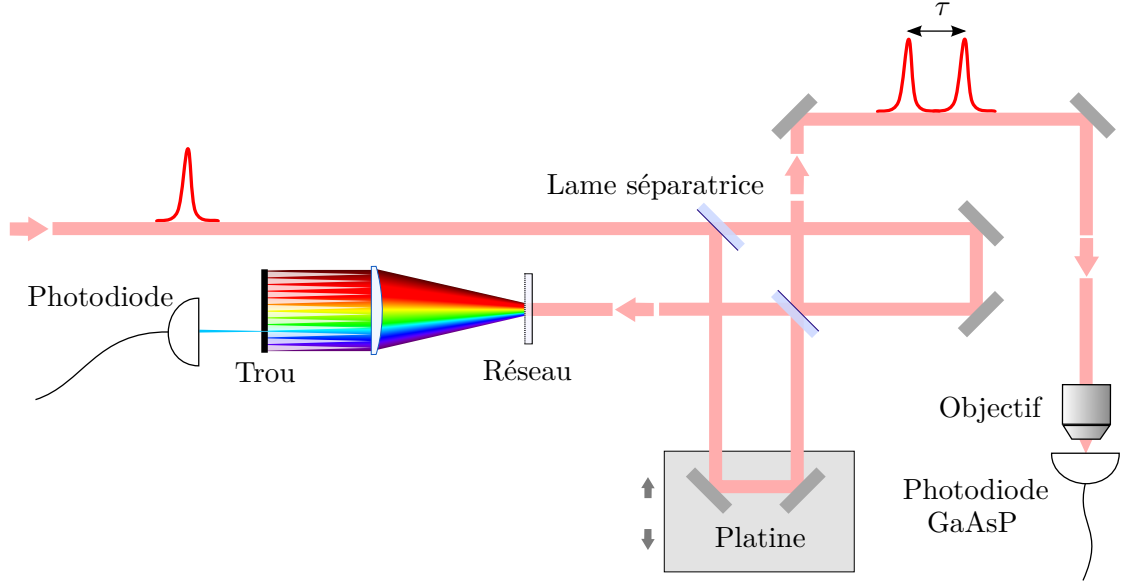


Figure 2.6: Montage expérimental pour la mesure de la fonction d'autocorrélation interférométrique du second ordre des impulsions au foyer d'un objectif de microscope avec une photodiode à deux photons.

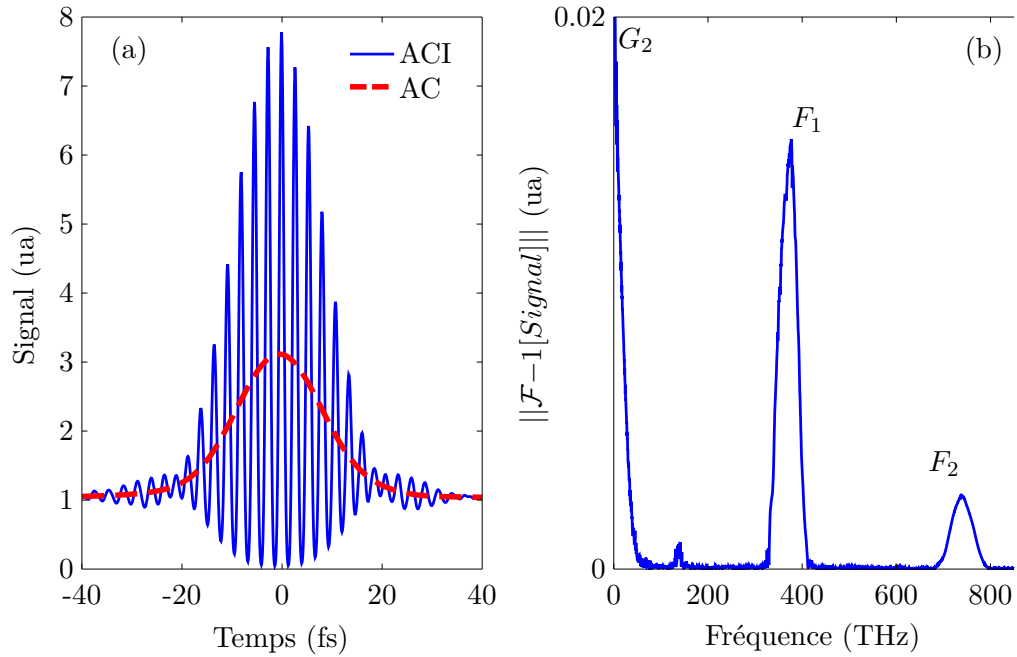


Figure 2.7: (a): Autocorrélation interférométrique du second ordre (ACI) mesurée avec le montage de la Fig. 2.6 et autocorrélation du second ordre (AC) extraite de la trace interférométrique par filtrage de Fourier.

(b): Module de la transformée de Fourier de l'ACI. On peut distinguer les différents termes de l'Eq. 2.23.

représentée Fig. 2.7(a) donne ainsi une durée d'impulsion de 14.6 fs au foyer de l'objectif de microscope.

Une mesure d'ACI est simple à mettre en œuvre et présente l'avantage de donner à fois la durée des impulsions (en faisant une hypothèse sur leur profil) mais aussi le spectre à deux photons correspondant. Remarquons néanmoins qu'il s'agit d'une méthode de caractérisation des impulsions très partielle et il est donc nécessaire de se doter de méthodes de mesure plus complètes, notamment pour annuler la phase spectrale au foyer de notre objectif de microscope.

### 2.4.3 Balayer la dérive de fréquence

Nous disposons d'un façonneur d'impulsions et cela offre un degré de liberté supplémentaire intéressant pour la caractérisation d'impulsions. Il existe en effet de nombreuses méthodes permettant d'exploiter un façonneur d'impulsions [28, 132] et nous allons détailler celle que nous utilisons régulièrement au laboratoire: le balayage de la dérive de fréquence [145, 147, 148, 156, 157]. Le principe de cette méthode repose sur l'ajout de phases spectrales quadratiques parfaitement connues  $f''(\omega)$  à la phase spectrale à déterminer  $\varphi(\omega)$  puis à mesurer le signal de génération de seconde harmonique dans un cristal quadratique avec un spectromètre pour ces différentes phases. Pour comprendre comment extraire la phase spectrale des impulsions de la trace mesurée, intéressons-nous à la forme du signal mesuré correspondant à un processus de génération de seconde harmonique dans un cristal non-linéaire quadratique. Au niveau microscopique, la polarisation non-linéaire d'ordre deux s'écrit [3–5]:

$$\mathcal{P}^{(2)}(t) = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \mathcal{E}(t)^2 = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \mathcal{E}^{(2)}(t) \quad (2.24)$$

Elle est donc directement proportionnelle au champ à deux photons. Dans un milieu homogène, le champ rayonné est lui-même proportionnel à la dérivée première de la polarisation. Dans l'espace des fréquences, il existe donc un facteur  $i\omega$  entre la seconde harmonique rayonnée et le champ à deux photons, ce qui signifie que le spectre de seconde harmonique est proportionnel à  $\omega^2 |\mathcal{E}^{(2)}(\omega)|^2$ , soit le spectre à deux photons (au facteur  $\omega^2$  près). Naturellement, ceci n'est valable que si l'on peut supposer que l'accord de phase est réalisé sur une bande spectrale plus large que celle de l'impulsion, par exemple

dans le cas d'un cristal extrêmement fin ou d'une longueur d'interaction suffisamment courte. Dans la mesure où nous utilisons des objectifs de grandes ouvertures numériques (supérieures à 0.8), les distances d'interaction avec le cristal sont suffisamment petites pour supposer que l'on est dans ce régime [158, 159]. Le signal mesuré s'écrit donc:

$$S(2\omega) \propto \omega^2 \left| \int |\mathcal{E}(\omega + \Omega)| |\mathcal{E}(\omega - \Omega)| \exp [i (\varphi_{totale}(\omega + \Omega) + \varphi_{totale}(\omega - \Omega))] d\Omega \right|^2 \quad (2.25)$$

Remarquons qu'il est possible d'utiliser une photodiode à deux photons pour mesurer le spectre à deux photons comme nous l'avons vu à la section précédente mais cela nécessite l'utilisation d'un interféromètre ce qui complexifie le montage.

Supposons maintenant la phase spectrale  $\varphi$  suffisamment lentement variable pour être correctement modélisée au voisinage de  $\omega$  (où  $2\omega$  est la pulsation de mesure du signal) par un développement de Taylor au troisième ordre. Dans ce cas, la phase totale s'écrit:

$$\varphi_{totale}(\Omega) \simeq \varphi(\omega) + \varphi'(\omega) \times (\Omega - \omega) + f(\Omega) + \frac{\varphi''(\omega)}{2}(\Omega - \omega)^2 + \frac{\varphi'''(\omega)}{6}(\Omega - \omega)^3 \quad (2.26)$$

Il apparaît que si on a:  $f''(\Omega) = -\varphi''(\omega)$  alors la phase totale est antisymétrique par rapport à la fréquence  $\omega$  et nous avons vu que le signal est alors maximal en  $2\omega$  (section 2.3.3). En pratique, on utilise le façonneur d'impulsions pour introduire un ensemble de phases quadratiques pures:  $f_k(\Omega) = -\frac{p_k}{2}(\Omega - \omega_0)^2$  (où  $\omega_0$  est la fréquence centrale) et on détermine ensuite pour chaque fréquence  $\omega$  le paramètre  $p_{max}$  maximisant le signal de SHG. Remarquons que pour une dérive de fréquence suffisante, on peut appliquer la formule du spectre de SHG obtenue avec la méthode de la phase stationnaire:

$$S_k(2\omega) \propto \omega^2 \frac{|\mathcal{E}(\omega)|^4}{|p_k + \varphi''(\omega)|} \quad (2.27)$$

De façon alternative à la détection de maximum, on peut, à  $\omega$  fixé, procéder à un ajustement des données en fonction de  $p_k$  avec une fonction Lorentzienne:  $\frac{a}{(p_k - b)^2 + c}$  afin d'en déduire  $\varphi''(\omega)$  [108]. Notons qu'on privilégie une Lorentzienne à la forme de l'Eq. 2.27 obtenue avec la méthode de la phase stationnaire afin d'éviter la divergence en  $p_k = -\varphi''(\omega)$ . La Fig. 2.8 montre deux traces obtenues au foyer d'un objectif de micro-

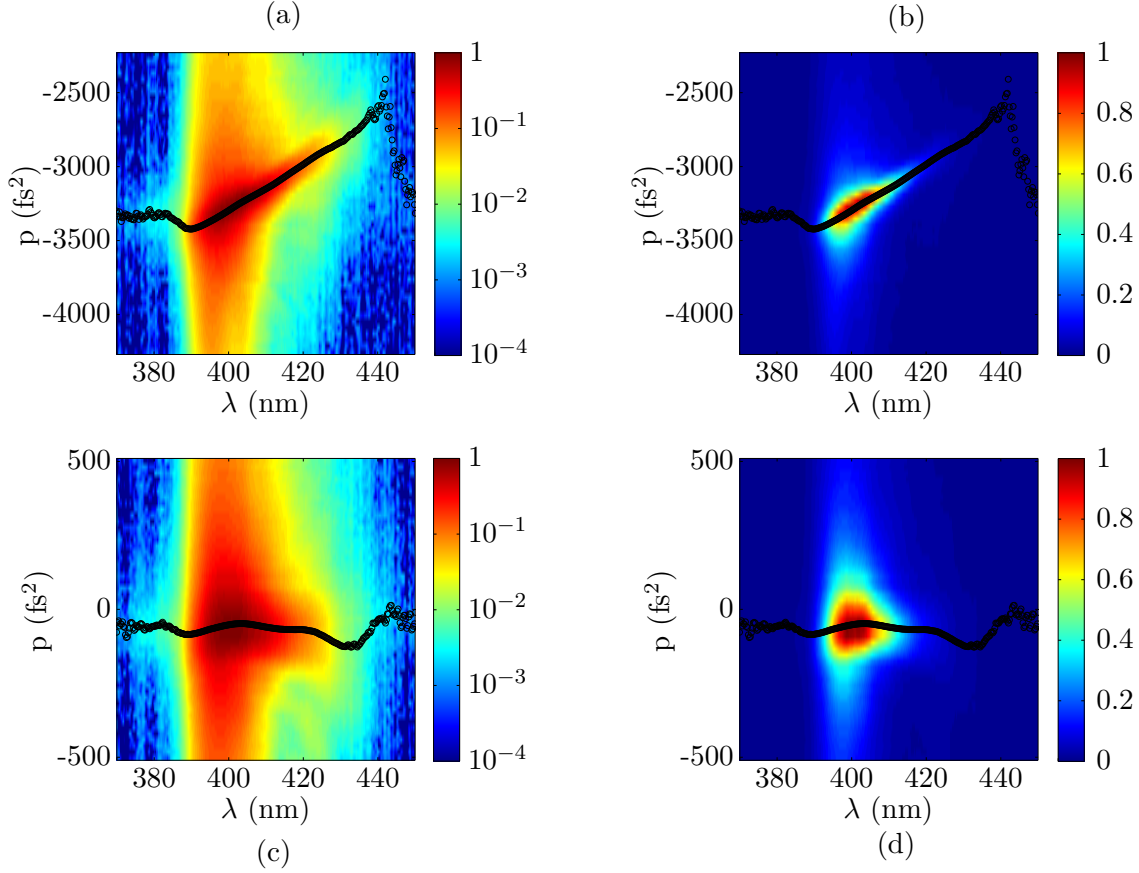


Figure 2.8: (a) et (b): Traces obtenues en mesurant le spectre de SHG au foyer de l'objectif de microscope (0.8 NA 40x) avec un cristal de BBO et balayant la dérive de fréquence avec notre façonneur d'impulsions. (a) est en échelle logarithmique et (b) en échelle linéaire.

(c), (d): Traces obtenues après compensation de la phase extraite de (a) (représentée Fig. 2.9). (c) est en échelle logarithmique et (d) en échelle linéaire.

Les courbes noires représentent l'opposée de la dérivée seconde de la phase spectrale au foyer.

spectre 0.8 NA 40x avec un cristal de BBO pour différentes phases d'ordre 2 introduites par notre façonneur d'impulsions, mesurées avec un spectromètre Acton (Princeton Instruments, USA). Les Fig. 2.8(a), (b) montrent la première itération (respectivement en échelle logarithmique et linéaire) et (c), (d) la seconde (respectivement en échelle logarithmique et linéaire), après avoir compensée la phase mesurée à partir de (a). Nous avons balayé 50 phases spectrales quadratiques ce qui représente un temps d'acquisition total de l'ordre de 1 min par trace. En observant la Fig. 2.8(a), on peut voir que le maximum de signal se trouve vers  $-3400 \text{ fs}^2$ , ce qui signifie que l'impulsion présente une dérive de fréquence qui peut être considérée comme linéaire en première approximation,

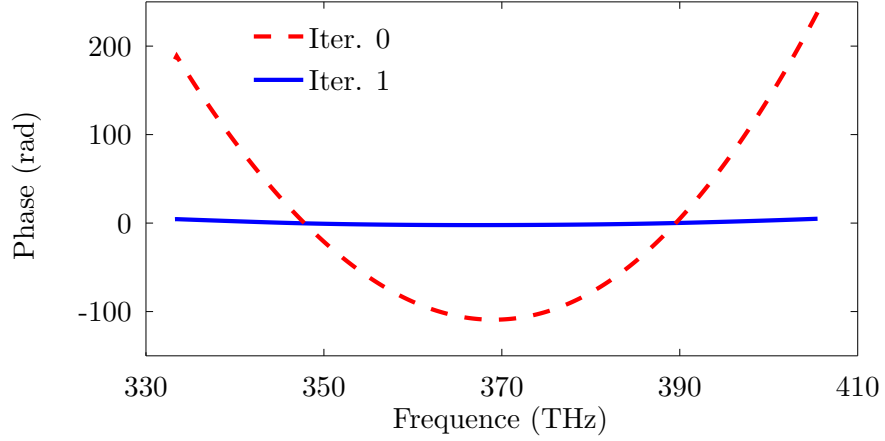


Figure 2.9: Phases extraites des traces de la Fig. 2.8(a) (Iter. 0) et (c) (Iter. 1).

avec une dérivée seconde de la phase de l'ordre de  $3400 \text{ fs}^2$ . Par ailleurs, la Fig. 2.8(a) montre aussi une variation du paramètre  $p$  optimal en fonction de la longueur d'onde, ce qui montre qu'il y a également une certaine composante du troisième ordre dans la phase spectrale. En pratique, la dérivée seconde de la phase est obtenue en enregistrant l'opposé des pics enregistrés pour chaque fréquence, représentés en noir sur la Fig. 2.8. Les phases extraites des traces Fig. 2.8(a) et (c) sont représentées Fig. 2.9 et ont été obtenues par double intégration numérique des dérivées seconde de la phase, suivie d'un ajustement linéaire pour soustraire la composante de retard. On peut voir qu'après une itération la phase est déjà globalement compensée. On peut procéder à plusieurs itérations pour une compensation parfaite.

En conclusion, la technique de balayage de la dérive de fréquence [145, 147, 148, 156, 157] est une méthode efficace pour caractériser la phase spectrale au foyer d'un objectif de microscope en quelques minutes.

### 2.4.4 FROG interférométrique

Nous avons récemment implémenté un FROG interférométrique (iFROG), notamment pour disposer d'une méthode de caractérisation des impulsions au foyer d'un objectif de microscope lorsque nous n'utilisons pas notre façonneur d'impulsions. Le schéma expérimental est représenté de façon schématique Fig. 2.11. J'ai encadré le développement d'un interféromètre de Mach-Zender (Fig. 2.10 et Fig. 2.11) par des étudiants de l'Ecole Polytechnique au cours d'un projet scientifique collectif [160] ainsi que par

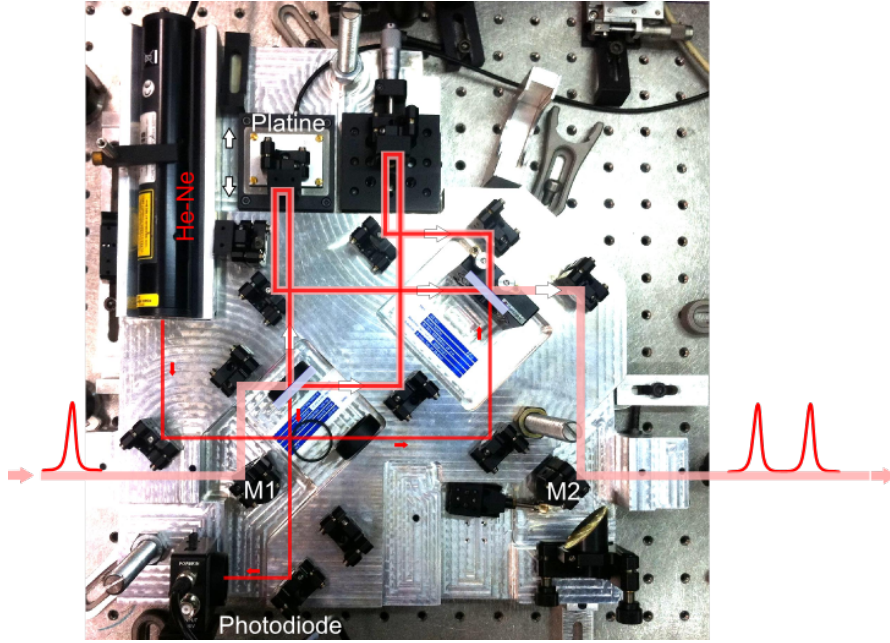


Figure 2.10: Interféromètre de Mach-Zender utilisé pour l'acquisition des traces FROG interférométriques et développé par des étudiants de l'Ecole Polytechnique au cours d'un projet scientifique collectif [160] ainsi que par Alexandre Mougel lors d'un stage recherche de Master 1 au laboratoire [161], avec le soutien financier du Réseau des Technologies Femtosecondes du CNRS.

Alexandre Mougel lors d'un stage recherche de Master 1 au laboratoire [161], avec le soutien financier du Réseau des Technologies Femtosecondes du CNRS. Cette interféromètre présente l'avantage de pouvoir être facilement intégré dans le montage expérimental par l'intermédiaire des deux miroirs commutables M1 et M2 de la Fig. 2.10. Le retard entre les impulsions est introduit par une platine de translation piézoélectrique (Physik Instrumente, Allemagne) et mesuré précisément par l'intermédiaire des franges d'un laser Hélium-Néon. Les deux impulsions produites par l'interféromètre ( $\mathcal{E}_{MZ}(t) = \mathcal{E}(t) + \mathcal{E}(t - \tau)$ ) sont envoyées vers le microscope où elles sont focalisées dans un cristal de BBO. Le signal de SHG est couplé dans une fibre optique raccordée à un spectromètre Acton (Princeton Instruments, USA). Le spectre du champ doublé s'écrit [139]:

$$I_{iFROG}(\omega, \tau) \propto \left| \mathcal{E}_{MZ}^{(2)}(\omega) \right|^2 \propto \left| \int (\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}(t - \tau))^2 \exp(i\omega t) dt \right|^2 \quad (2.28)$$

Remarquons que l'on néglige le facteur  $\omega^2$  dans cette expression. On peut montrer, après développement, que cette expression devient [162]:

$$\begin{aligned}
 I_{iFROG}(\omega, \tau) \propto & 2I_{SHG}(\omega) + 4I_{FROG}(\omega, \tau) \\
 & + 8 \cos\left(\frac{\omega\tau}{2}\right) \operatorname{Re} \left[ \mathcal{E}^{(2)}(\omega)^* \mathcal{E}_{FROG}(\omega, \tau) \exp\left(i\frac{\omega\tau}{2}\right) \right] \\
 & + 2I_{SHG}(\omega) \cos(\omega\tau)
 \end{aligned} \tag{2.29}$$

où  $I_{SHG}(\omega) = |\mathcal{E}^{(2)}(\omega)|^2$  est le spectre à deux photons,  $\mathcal{E}_{FROG}(\omega, \tau) = \int \mathcal{E}(t) \mathcal{E}(t - \tau) \exp(i\omega t) dt$  et enfin  $I_{FROG}(\omega, \tau) = |\mathcal{E}_{FROG}(\omega, \tau)|^2$  est la trace FROG standard. Remarquons que les termes de l'Eq. 2.29 sont modulés à différentes fréquences. En effet, ces termes étant non nuls au voisinage de  $2\omega_0$ , il apparaît que les deux premiers termes sont lentement variables tandis que le troisième terme est modulé à la fréquence  $\omega_0$  et le dernier à la fréquence  $2\omega_0$ . On peut donc séparer ces trois termes par analyse de Fourier. Nous utilisons l'approche de Amat-Roldán *et al.* qui consiste à extraire le terme lentement variable contenant la trace FROG habituelle pour ensuite utiliser les outils usuels de FROG afin d'extraire la forme de l'impulsion [139]. Notons qu'il est aussi possible d'utiliser le terme modulé à  $\omega_0$  pour extraire la forme de l'impulsion, soit par une méthode itérative [162] soit par une approche analytique [138]. La Fig. 2.12(a) montre une trace FROG mesurée au foyer de l'objectif de microscope avec le montage expérimental représentée Fig. 2.11. L'enregistrement des franges du laser Helium-Néon et l'acquisition des spectres sont synchronisés de façon à parfaitement connaître le retard correspondant à chacun des spectres. La trace interférométrique représentée contient 1000 spectres et a nécessité un temps d'acquisition de 2 secondes. La Fig. 2.12(b) montre la transformée de Fourier de la trace interférométrique (a) par rapport au retard  $\tau$ . Notons la présence des termes attendus au voisinage de  $f_0 = 375$  THz et  $2f_0 = 700$  THz. On utilise un filtrage super gaussien (courbe blanche) pour extraire les deux termes lentement variables. La Fig. 2.12(c) montre la trace obtenue une fois revenu dans l'espace de départ. Notons que le terme  $I_{FROG}(\omega)$  ne dépend pas du retard tandis que le terme  $I_{FROG}(\omega, \tau)$  n'est non nul qu'au voisinage du retard nul. On peut donc estimer le terme  $I_{FROG}(\omega)$  aux grands retards. La Fig. 2.12(d) montre la trace FROG obtenue après soustraction du terme  $2I_{SHG}(\omega)$ . On peut remarquer la présence d'un petit signal présent sur toutes la trace

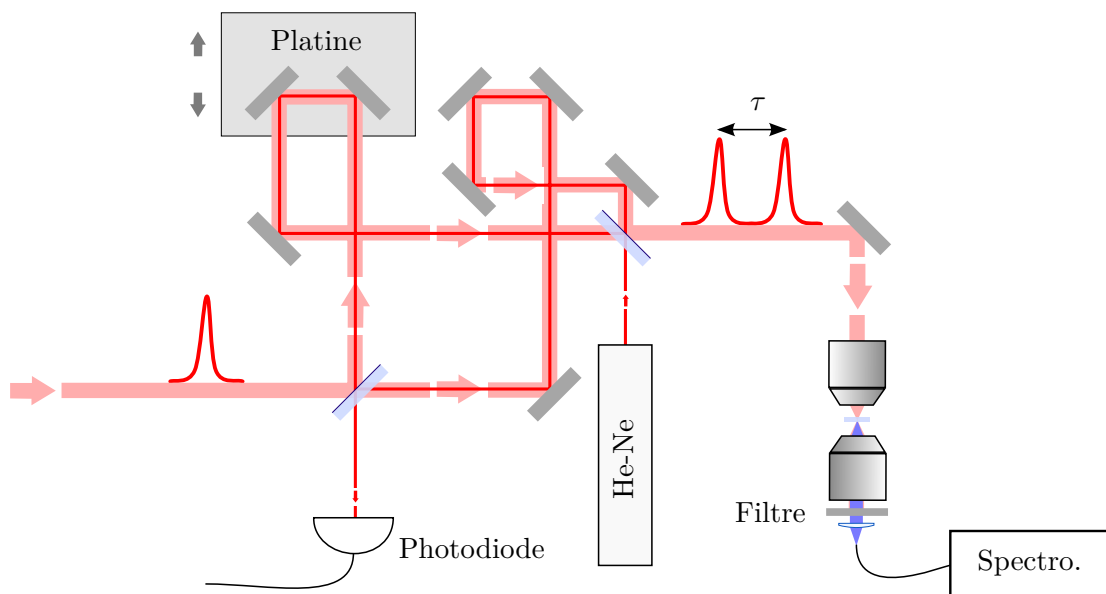


Figure 2.11: Représentation schématique du montage expérimental utilisé pour l'acquisition des traces FROG interférométriques.

et qui n'est *a priori* pas pertinent. Dans la mesure où il est indispensable d'avoir des traces très propres pour extraire de façon satisfaisante la forme d'une impulsion d'une trace FROG, nous effectuons un seuillage pour obtenir la trace représentée Fig. 2.13 (a). Nous utilisons ensuite l'algorithme de projection généralisée (Principal Component Generalized Projections Algorithm en anglais) [134–136] tel que proposé par D.J. Kane [135]. Il offre la possibilité d'extraire d'extraire  $\mathcal{E}$  et  $\mathcal{E}_G$  d'un signal de la forme:

$$S(\omega, \tau) \propto \left| \int (\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}_G(t - \tau))^2 \exp(i\omega t) dt \right|^2 \quad (2.30)$$

Nous n'imposons pas  $\mathcal{E} = \mathcal{E}_G$  dans notre implémentation dans la mesure où les champs peuvent ne pas être rigoureusement identiques (nombre de réflexions différent, co-alignement imparfait) mais l'algorithme converge toujours vers une solution où les deux champs sont très proches. La Fig. 2.13(b) montre la trace obtenue après une centaine d'itérations de l'algorithme ainsi que le spectre et la phase spectrale de l'impulsion correspondante Fig. 2.13(c). Remarquons que la phase est quasiment nulle car nous avons utilisé la méthode du balayage de la dérive de fréquence auparavant pour compenser la phase spectrale. Pour tester notre nouveau dispositif de caractérisation, nous avons ajouté une phase de 200 fs<sup>2</sup> avec le façonneur. La Fig. 2.14 montre la trace mesurée (a) et



celle proposée par l'algorithme de projection généralisée (b) après 100 itérations. La Fig. 2.14(c) représente le spectre et la phase correspondant à la trace (b). Notons que l'accord avec la phase appliquée est bon mais de signe opposé: nous avons ajouté 200 fs<sup>2</sup> et nous mesurons -200 fs<sup>2</sup>. En effet, les traces obtenues étant symétrique par rapport à  $\tau$ ,  $\mathcal{E}(t)$  et  $\mathcal{E}(-t)$  sont des solutions possibles et il n'est pas possible de les distinguer par cette approche.

Cette technique de caractérisation est donc opérationnelle et permet de mesurer en quelques minutes la formes des impulsions au foyer de notre objectif de microscope.

### 2.4.5 Mesure du spectre à deux photons

Préalablement à une expérience de contrôle de l'absorption à deux photons dans un échantillon biologique, il est indispensable de mesurer et de contrôler la forme du spectre à deux photons au foyer de l'objectif de microscope. Pour cela, il existe donc deux méthodes de mesure envisageables: une mesure d'autocorrélation interférométrique du deuxième ordre avec une photodiode à deux photons ou bien la génération de seconde harmonique dans un cristal doubleur. La première approche présente l'avantage de donner directement le spectre à deux photons avec un détecteur de réponse spectrale constante [163]. La deuxième est plus simple à mettre en œuvre mais le spectre mesuré n'est pas directement le spectre à deux photons: il y a un terme  $\omega^2$  en facteur. La Fig. 2.15 montre un ensemble de spectres doublés mesurés au foyer d'un objectif 0.8 NA 40x pour une impulsion limitée par transformée de Fourier, obtenue par balayage de la dérive de fréquence, ainsi que pour différentes phase du troisième ordre de 30000 fs<sup>3</sup> introduites par la ligne 4f décrite au premier chapitre. Contrairement à ce qui est attendu, les maxima des pics n'atteignent pas tout à fait l'enveloppe formée par le spectre doublé correspondant à une impulsion limitée par transformée de Fourier. Plusieurs éléments peuvent contribuer à cet artefact: les couplages spatio-temporels décalent les composantes spectrales qui peuvent ne plus être parfaitement couplées dans l'objectif de microscope et des phases du troisième ordre ont des pentes importantes, ce qui peut nuire à l'efficacité du masque 2D diffractif que nous employons. Remarquons que le spectre à deux photons correspondant à l'impulsion limitée par transformée de Fourier (courbe bleue) montre un bruit important qui est en réalité dominé par du *speckle* spectral dû à

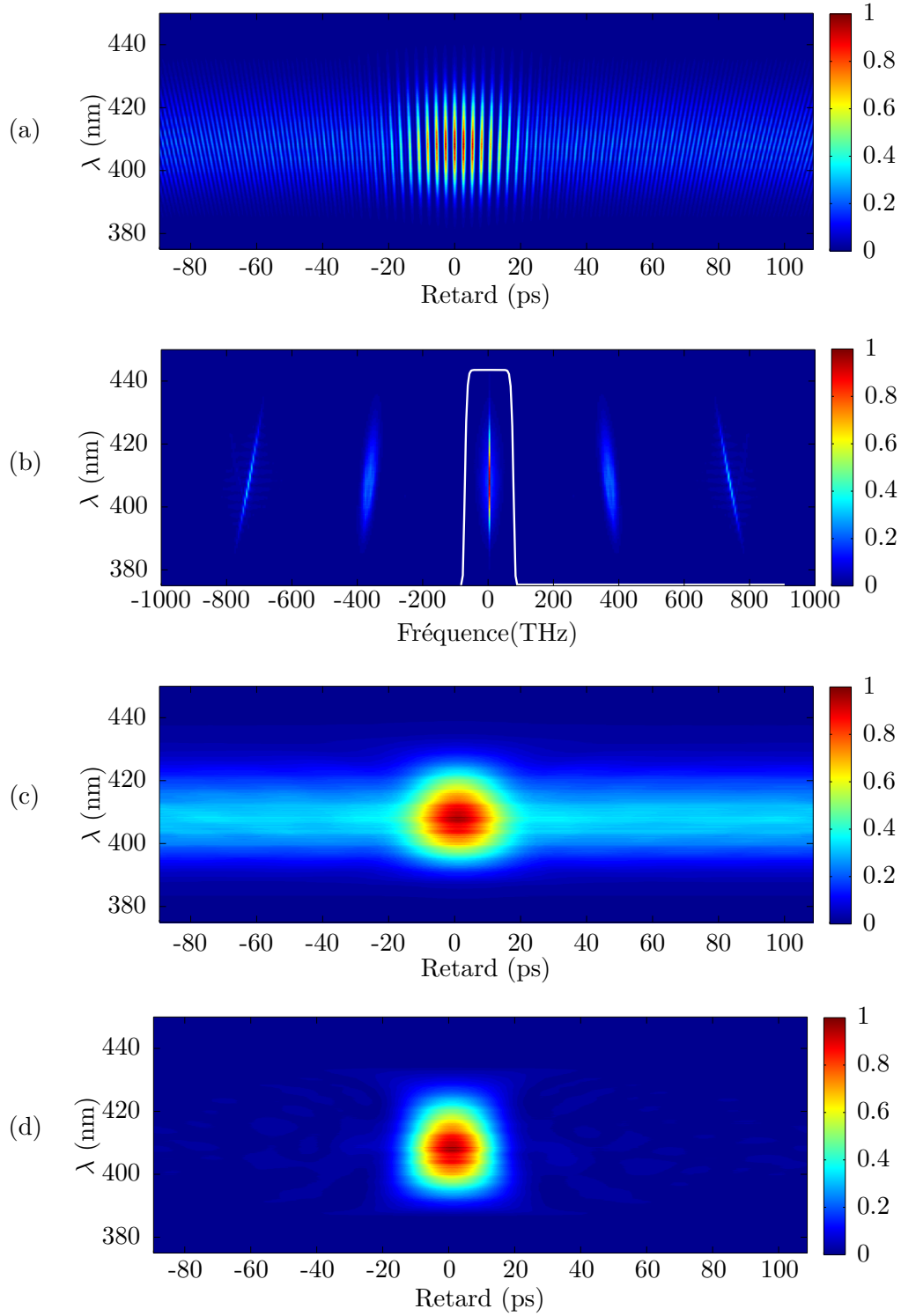


Figure 2.12: (a) Trace FROG interférométrique mesurée avec le montage de la Fig 2.11 (1000 spectres enregistrés à 500 Hz, soit un temps d'acquisition total de 2 secondes). (b): Module de la transformée de Fourier de la trace (a) et fenêtrage super-gaussien utilisé pour sélectionner le terme central. (c): Transformée inverse du terme fenêtré en (a). (d): Trace obtenue à partir de (c) en soustrayant le terme de SHG évalué aux grands retards.

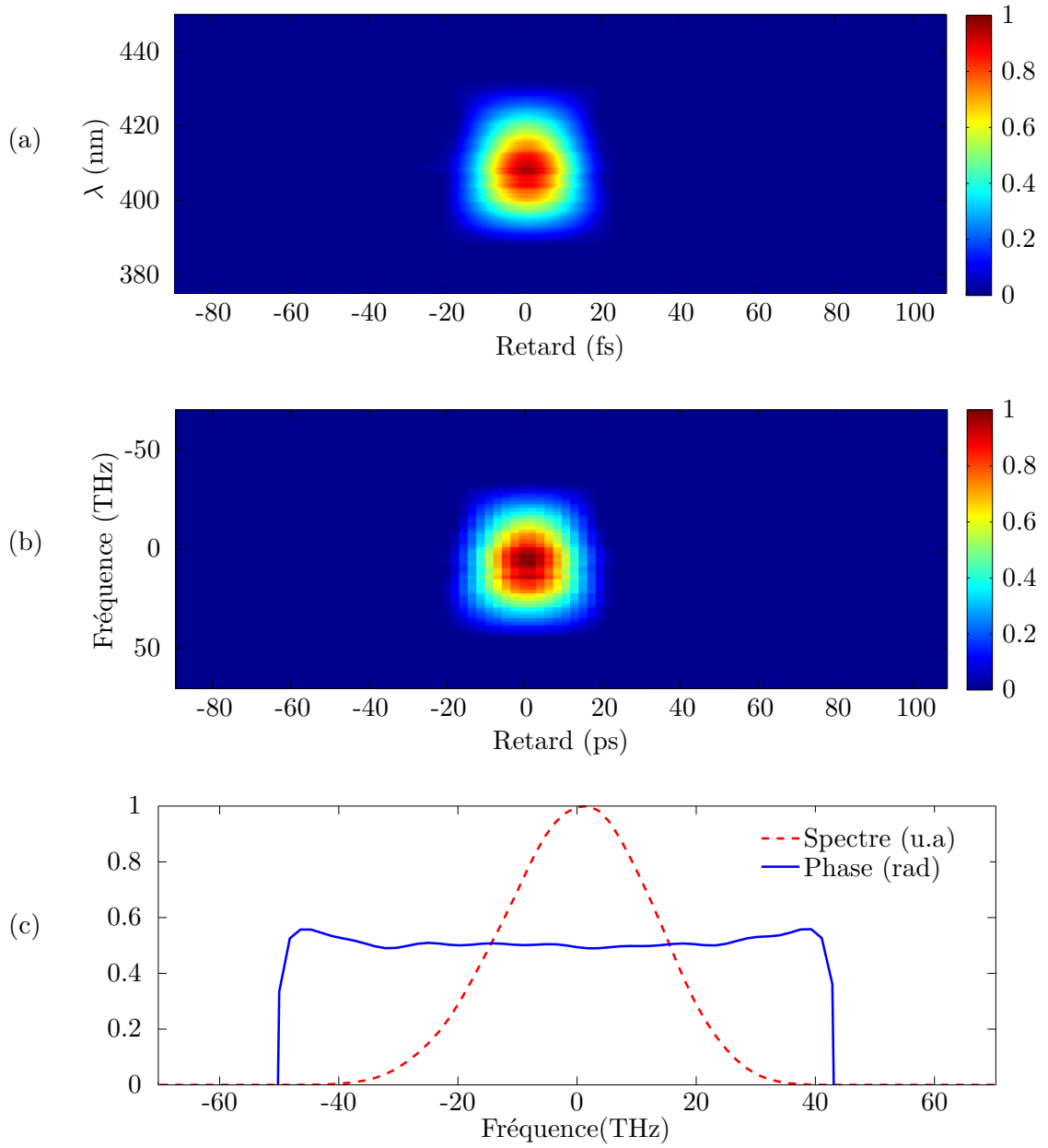


Figure 2.13: (a): Trace obtenue après filtrage et seuillage de la trace Fig. 2.12(d).  
 (b): Trace simulée obtenue à partir de (a) par l'algorithme de projection généralisée [134–136].  
 (c): Spectre et phase spectrale de l'impulsion extraite de la trace (a) et correspondant à la trace (b).

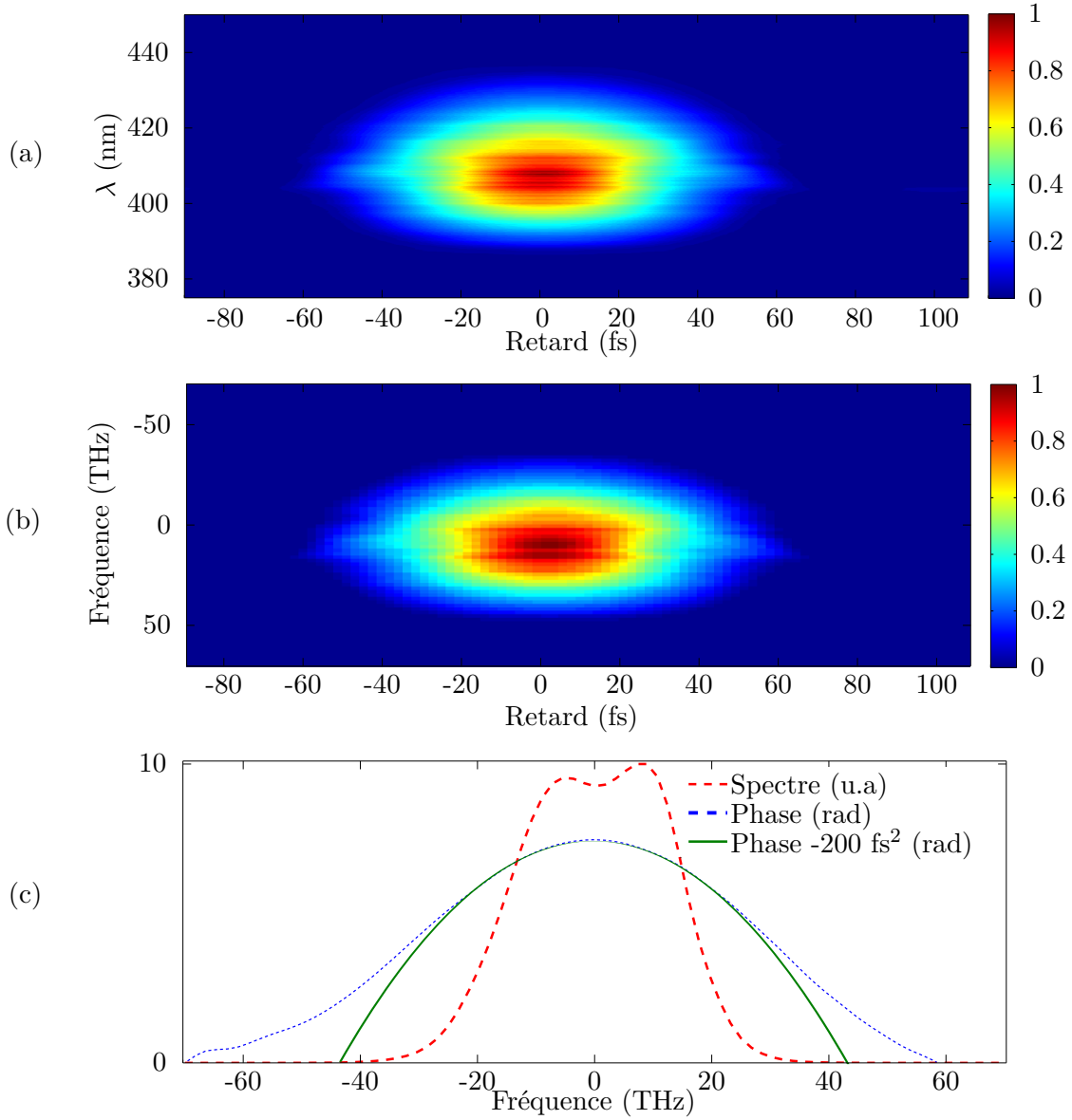


Figure 2.14: (a): Trace obtenue après filtrage et seuillage d'une trace similaire à Fig. 2.12(d) mais après ajout d'une phase spectrale de  $200 \text{ fs}^2$  avec le façonneur d'impulsions.

(b): Trace simulée obtenue à partir de (a) par l'algorithme de projection généralisée [134–136].

(c): Spectre et phase spectrale de l'impulsion extraite de la trace (a) et correspondant à la trace (b) ainsi qu'une phase quadratique de  $-200 \text{ fs}^2$  (courbe noire).

la fibre multimode que nous utilisons pour coupler le signal au spectromètre.

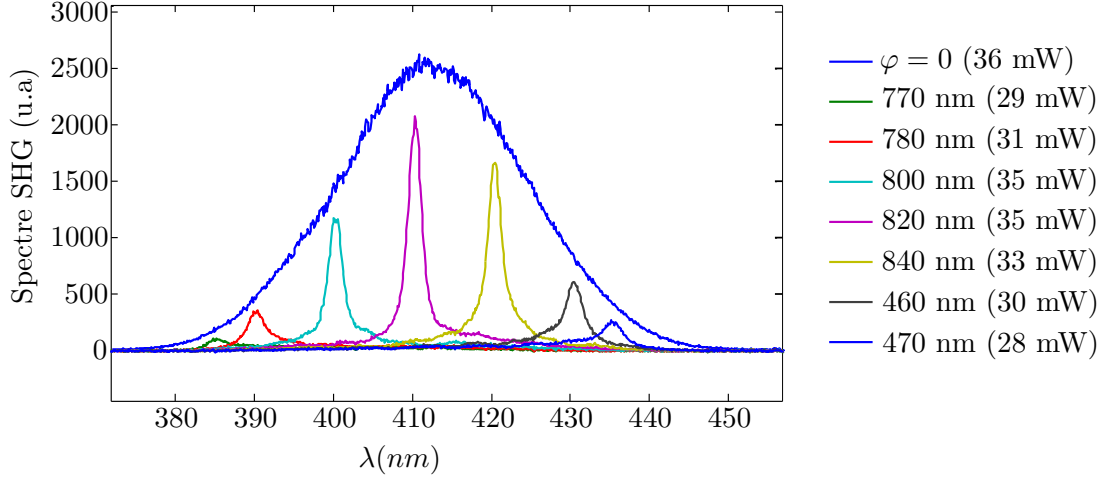


Figure 2.15: Spectres de SHG mesurés avec un cristal de BBO après focalisation par un objectif de microscope 40x 0.8 NA correspondant à différentes phases du troisième ordre ( $30000 \text{ fs}^3$ ) avec différentes fréquences d'antisymétrie. Les spectres sont mesurés avec une sphère intégratrice et un spectromètre Ocean Optics avec un temps d'intégration de 200 ms.

### 2.4.6 Conclusion

En conclusion, nous utilisons deux méthodes de caractérisation complète des impulsions au foyer de notre objectif de microscope. Lorsque le façonneur d'impulsions est impliqué dans l'expérience, nous utilisons la méthode du balayage de la dérive de fréquence qui permet de mesurer les impulsions après quelques itérations nécessitant quelques minutes. Lorsque le façonneur n'est pas utilisé, nous faisons appel à la variante interférométrique de FROG. Nous faisons l'acquisition de traces interférométriques en quelques secondes puis un traitement approprié des données brutes permet d'extraire la trace FROG usuelle que nous traitons avec l'algorithme de projection généralisée pour extraire la phase et le spectre des impulsions. Pour contrôler la forme du spectre à deux photons, nous utilisons ici une approche de spectrométrie par transformée de Fourier avec une photodiode à deux photons ou bien le spectre de SHG dans un cristal doubleur. Nous utilisons plus régulièrement cette dernière en raison de sa simplicité de mise en œuvre. Remarquons que dans le cas d'une expérience de microscopie, une fois la phase du deuxième ordre compensée, on peut directement optimiser le spectre à deux photons (largeur et position du pic d'excitation) sans chercher à caractériser plus finement la forme des impulsions.

### 2.5 Microscopie d'un échantillon biologique dynamique avec des impulsions façonnées

#### 2.5.1 Microscopie 2PEF avec impulsions façonnées: état de l'art

En 1998, le groupe de Silberberg démontre pour la première fois qu'il est possible de contrôler l'absorption à deux photons d'un système à deux niveaux (l'atome de Césium) avec des impulsions de spectre large (environ 20 nm à mi-hauteur) dont la phase spectrale est antisymétrique (sinusoïdale dans leur cas). Par la suite, les mêmes principes ont conduit à des expériences de microscopie à deux photons sélectives. Tout d'abord Pastirk *et al.* ont réalisé une expérience de microscopie à deux photons sélective en pH [20] avec un spectre de 50 nm de large et des phases sinusoïdales. Ils ont imagé des gouttelettes aqueuses de différents pH contenant des molécules fluorescentes dont le spectre d'absorption à deux photons dépend du pH. Ce même groupe démontre aussi qu'il est possible de réaliser le même type d'expérience à travers un milieu diffusant [164, 165]. Pour cela ils sondent le même type de molécules fluorescentes sensibles au pH mais intercalent un tissu diffusant (1.5-2 mm de chair de poulet) entre l'objectif de microscope et les sondes fluorescentes. Ils utilisent un spectre de 90 nm à mi-hauteur et une phase binaire aléatoire sur la moitié du spectre. En 2006, notre laboratoire réalise la première expérience de microscopie à deux photons sélective d'un organisme biologique [23]. Deux fluorophores présents dans un embryon de drosophile ont été sélectivement excités par l'intermédiaire d'impulsions façonnées de spectre de 100 nm de largeur à mi-hauteur et de phase spectrale sinusoïdale. Cette expérience a utilisé un filtre acousto-optique dispersif programmable [40, 166] avec une fréquence de commutation rapide (10kHz) entre les formes d'impulsions de façon à ce que l'acquisition des deux signaux de fluorescence puisse être effectuée quasi simultanément. Néanmoins, à cause d'une limitation inhérente à la technologie acousto-optique dans le cas d'impulsions à spectre large, seule une petite fraction du train d'impulsions à 80 MHz pouvait être utilisée pour générer le signal. Cette faible efficacité donnait des temps d'acquisition de plus de 5 minutes par image, et seuls des échantillons statiques ont pu être observés.

Les expériences de microscopie sélective que nous venons de décrire [20, 23, 165] utilisaient souvent des objectifs de microscope dont les ouvertures numériques sont modérées

## 2.5. Microscopie d'un échantillon biologique dynamique avec des impulsions façonnées

du fait de la difficulté à contrôler la phase spectrale d'impulsions de durées très courtes (inférieures à 15 fs) au foyer d'un objectif de grande ouverture numérique. De plus, elles ne permettaient pas de commuter rapidement d'une forme d'impulsion à l'autre à cause des taux de rafraîchissement relativement faibles des façonneurs d'impulsions basés sur des SLM à cristaux liquides [20, 165] ou bien elles souffraient d'une mauvaise efficacité globale ce qui entraînait des temps d'acquisition longs [23]. A ce stade, l'enjeu pour notre laboratoire était d'élaborer un schéma d'imagerie sélective permettant la microscopie dynamique d'échantillons biologiques avec des temps d'acquisition et une résolution standards pour un microscope à deux photons. Dans la suite, nous allons décrire une première expérience de microscopie à deux photons sélective où des échantillons biologiques dynamiques ont été imagés avec des temps d'acquisition et une résolution standards pour un microscope à deux photons. Cette expérience a été effectuée en collaboration étroite avec Rajesh Pillai et Caroline Boudoux.

### 2.5.2 Façonnage d'impulsions et commutation rapide

#### Notre approche

Notre schéma de façonnage combine les masques de phase 2D diffractifs (avec un SLM adressé optiquement) [60] décrits au premier chapitre avec une nouvelle technique de commutation rapide de la phase spectrale développée par Frumker *et al.* Cette dernière utilise un miroir galvanométrique placé dans une ligne 4f pour lire différentes phases spectrales inscrites dans la dimension verticale d'un masque de phase 2D statique [167] ou programmable [168]. Elle permet de commuter à une fréquence kiloHertz entre différentes formes d'impulsions de formes arbitraires. Dans cette approche, l'utilisation d'une optique sphérique dans la ligne 4f permet de déscanner automatiquement le faisceau qui peut ensuite être couplé à un dispositif de mesure (microscope ou autre) quelle que soit la forme de l'impulsion. L'utilisation d'une optique sphérique rend cette technique *a priori* incompatible avec les masques 2D diffractifs qui nécessitent une optique cylindrique pour étaler le faisceau selon la direction verticale. Nous sommes parvenus à combiner ces deux approches (Fig. 2.16) en utilisant une optique cylindrique et en programmant deux réseaux de phase blazés sur la partie haute et la partie basse du SLM 2D mais dont les angles de blaze sont de signes opposés.

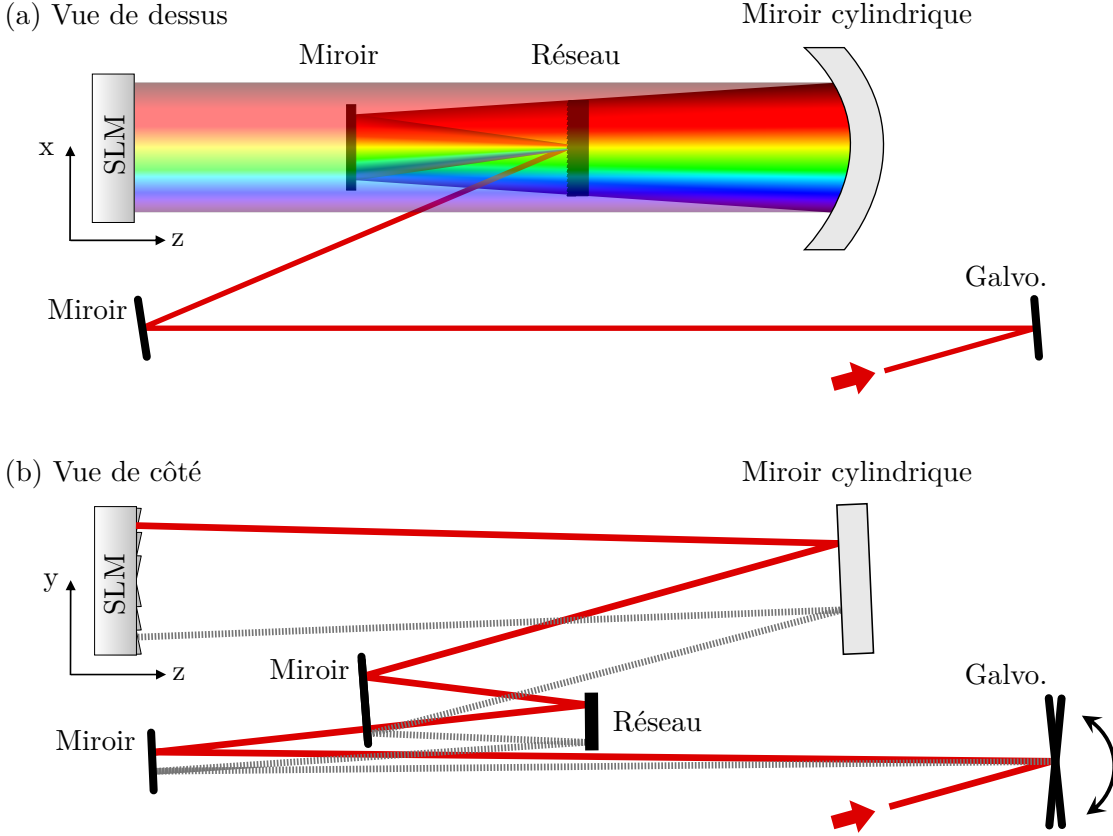


Figure 2.16: (a) est une représentation schématique du façonneur d'impulsions vue de dessus et (b) en est une vue de côté. Un SLM est placé dans le plan de Fourier d'une ligne  $4f$  en géométrie repliée. Le masque de phase 2D est utilisé dans la dimension  $x$  comme un façonneur de phase spectrale et selon  $y$  comme une réseau de diffraction en configuration Littrow. Un miroir galvanométrique permet de commuter la position du faisceau entre deux positions du SLM correspondant à deux formes d'impulsions.

De cette façon, le faisceau envoyé sur la partie haute du SLM 2D par l'intermédiaire d'un miroir galvanométrique est diffracté dans l'ordre 1 de diffraction tandis que celui envoyé sur la partie basse est diffracté dans l'ordre -1. Les réseaux blazés employés correspondent à ceux décrits au premier chapitre et permettent de programmer deux formes d'impulsions arbitraires. De plus, les angles de blaze sont ajustés de manière à ce que les faisceaux soient renvoyés sur eux-même (configuration Littrow) et par conséquent, les faisceaux associés aux deux positions du miroir galvanométrique sont parfaitement colinéaires après avoir été descannés par la deuxième réflexion sur le miroir galvanométrique. Remarquons que si l'on emploie le même angle de blaze pour les deux réseaux de phase (partie haute et basse du SLM 2D) alors seul l'un des faisceaux est en



## 2.5. Microscopie d'un échantillon biologique dynamique avec des impulsions façonnées

configuration Littrow et après la deuxième réflexion sur le miroir galvanométrique, les faisceaux ne seraient pas colinéaires et seul l'un des deux faisceaux serait correctement couplé au microscope. La Fig. 2.16(a) illustre la vue de dessus du façonneur d'impulsions et la Fig. 2.16(b) en montre une vue de côté où l'alignement vertical a été exagéré pour plus de clarté. Dans la dimension verticale les optiques sont toutes plates et la propagation du faisceau est déterminée par les réflexions spéculaires, excepté au niveau du masque de phase où le faisceau est diffracté en configuration Littrow. Le faisceau est extrait du dispositif après la deuxième réflexion sur le miroir galvanométrique par un léger désalignement vertical.

Pour contrôler la forme des spectres à deux photons au foyer de l'objectif de microscope, nous avons utilisé une approche purement en phase spectrale et par conséquent les réseaux blazés avaient une amplitude de  $2\pi$  de façon à maximiser leur efficacité de diffraction sur tout le spectre. Notons de plus que nous avons employé des réseaux de phase de pas variables afin d'éviter la dispersion angulaire entre les différentes composantes spectrales, comme nous l'avons expliqué au premier chapitre.

### Montage expérimental

**Source laser** Pour les expériences de microscopie sélective, nous utilisons un oscillateur Titane:Saphir de taux de répétition de 75 MHz dont le spectre est d'environ 130 nm de largeur à mi-hauteur, centré à 820 nm et de puissance de sortie de 450 mW (Synergy PRO, Femtolasers, Autriche). Le façonneur d'impulsions est celui décrit au premier chapitre auquel nous avons adjoint un miroir galvanométrique (VM2500+, GSI Lumonics, USA) pour commuter rapidement entre les formes d'impulsion.

**Le microscope à balayage** Nous utilisons un microscope à balayage [1,2] précédemment développé au laboratoire et mis en place par Caroline Boudoux (Fig. 2.17). Il comporte deux miroirs galvanométriques orthogonaux (VM500, GSI Lumonics, USA), un objectif 0.8 NA 40 x à immersion dans l'eau (LUMPlanFl/IR, Olympus, Japon) et un télescope avec des lentilles traitées antireflet. Le signal de fluorescence est collecté vers l'arrière, c'est-à-dire juste avant l'objectif avec un miroir dichroïque (695 dcxru, Chroma Technology, USA), un filtre pour bloquer le laser (680/SP, Semrock, USA), un tube photomultiplicateur pour le comptage de photons (P25PC-02, ET Enterprises, Grande-

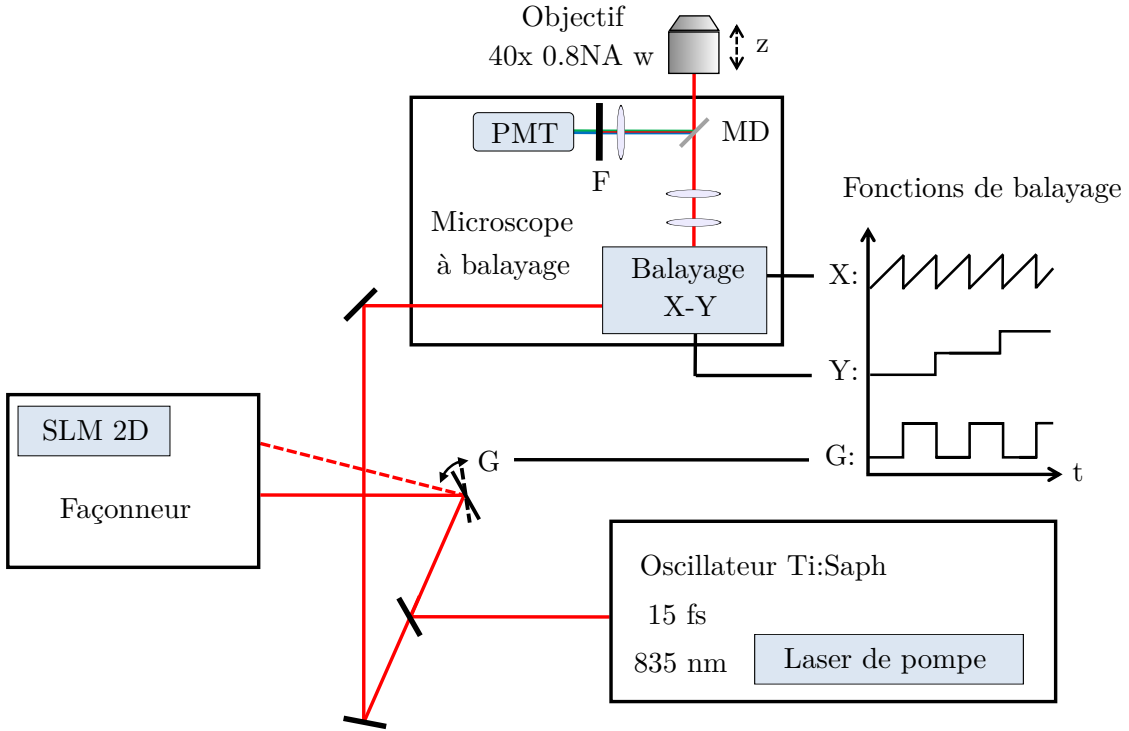


Figure 2.17: Montage expérimental. G: miroir galvanométrique, SLM 2D: modulateur spatial de lumière, MD: miroir dichroïque, F: filtre, PMT: tube photomultiplicateur (phototomultiplier tube ou PMT en anglais).

Bretagne) et une électronique de comptage développée au laboratoire par Xavier Solinas.

### 2.5.3 Résultats et discussions

#### Contrôle de la phase spectrale au foyer

Après la traversée des optiques du microscope (Fig. 2.17), les impulsions du laser, initialement limitées par transformée de Fourier, comportent une phase spectrale essentiellement du deuxième et troisième ordre de quelques milliers de  $\text{fs}^2$  et  $\text{fs}^3$  [169]. Nous avons réalisé une pré-compensation partielle de la dispersion du microscope en translatant le miroir de repli du façonneur d'impulsions par rapport à sa position en ligne à dispersion nulle. Puis, nous avons mesuré la phase résiduelle en utilisant la méthode du balayage de la dérive de fréquence [129,147], décrite précédemment, en mesurant le spectre à deux photons avec une photodiode à deux photons GaAsP placée au foyer de l'objectif de microscope 0.8 NA 40x à immersion dans l'eau. La trace obtenue du balayage de la dérive de fréquence est représentée Fig. 2.18(a). La durée des impulsions au foyer après compensation de la phase résiduelle a été mesurée en utilisant une mesure d'autocorrélation

## 2.5. Microscopie d'un échantillon biologique dynamique avec des impulsions façonnées

interférométrique du second ordre et était (en supposant une forme temporelle gaussienne) de l'ordre de 14 fs (Fig. 2.18(b)). Soulignons que cette durée d'impulsion au foyer d'un objectif dont la pupille arrière est surcouverte indique que la différence des temps de propagation entre le centre et les bords de la lentille était seulement de quelques femtosecondes [159]. Remarquons de plus que les couplages spatio-temporels résultant de la phase appliquée par le SLM et de la translation du miroir de repli étaient acceptables dans la mesure où les mesures spectrales au foyer de l'objectif ont montré que toutes les composantes spectrales étaient correctement co-focalisées (Fig. 2.18(c)). Le spectre à deux photons correspondant à une impulsion limitée par transformée de Fourier est représenté Fig. 2.18(d) (courbe noire). Les spectres à deux photons décalé vers le bleu et décalé vers le rouge sont également représentés respectivement par les courbes bleue et rouge. Le spectre du laser au foyer de l'objectif et des phases spectrales du troisième ordre de 15000 fs<sup>3</sup> centrées à des fréquences correspondant à 780 nm et 840 nm appliquées par le façonneur d'impulsions sont représentés Fig. 2.18(c). Le choix de ces formes de phases spectrales (positions et largeurs des pics d'excitation) est le résultat d'un compromis déterminé *in situ* entre les niveaux de signaux et le contraste entre les fluorophores étudiés (eGFP et la fluorescence endogène de notre échantillon comme décrit dans la suite).

La Fig. 2.18 démontre qu'en utilisant un SLM 2D, les mesures d'autocorrelation et la spectroscopie par transformée de Fourier, il a été possible de caractériser et de contrôler complètement la phase spectrale et le spectre à deux photons au foyer de l'objectif de microscope.

### Superposition des faisceaux façonnés

Il est important de s'assurer que les faisceaux diffractés par les deux positions du SLM 2D se recouvrent correctement au foyer de l'objectif de microscope de façon à ce que les deux faisceaux sondent le même point dans l'échantillon. Pour cela on dispose de deux degrés de liberté: on peut contrôler finement les tensions du miroir galvanométrique correspondant aux deux positions du faisceau sur le SLM 2D mais on peut aussi ajuster la direction de diffraction des réseaux de phase en ajustant continuellement leurs périodes. En pratique, nous avons obtenu le recouvrement spatial des deux faisceaux au foyer de

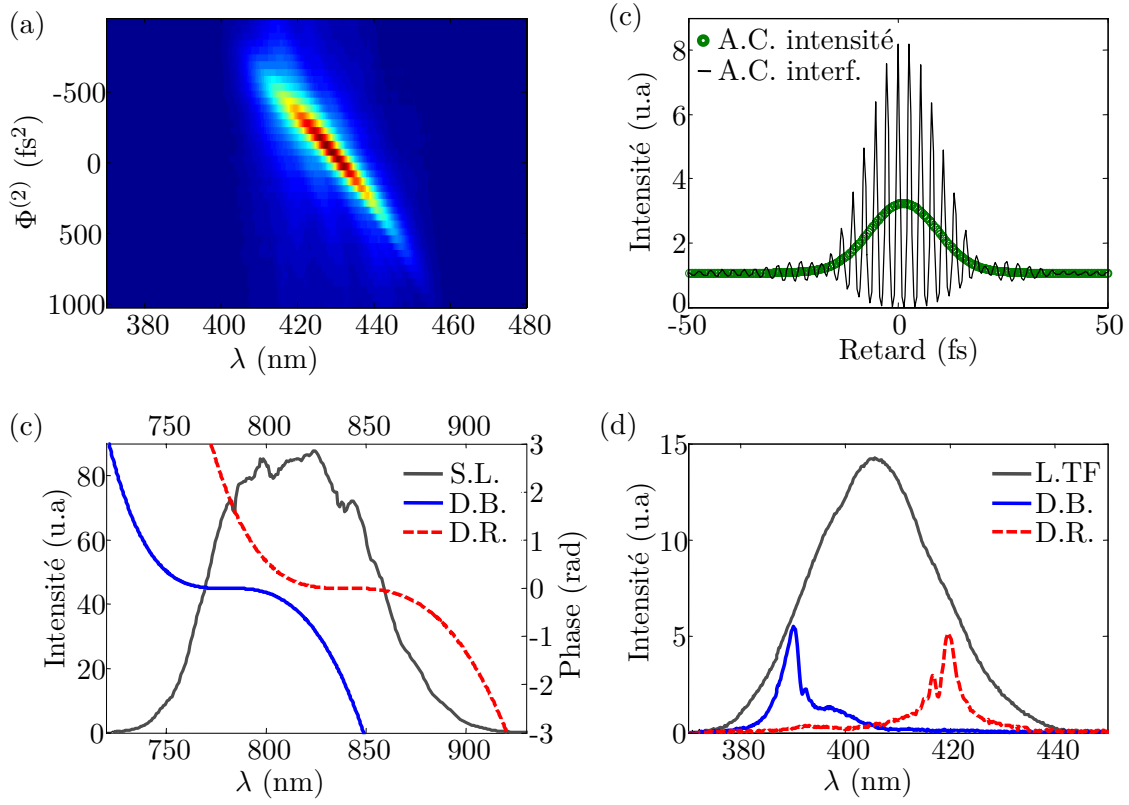


Figure 2.18: (a): Trace obtenue lors d'une mesure de balayage de la dérive de fréquence avec un objectif 0.8NA 40x à immersion dans l'eau dans le cas d'une phase résiduelle du troisième ordre. (b): Autocorrelation interférométrique du deuxième ordre (courbe noire) et autocorrelation en intensité (cercles verts) correspondant à une impulsion quasi limitée par transformée de Fourier ( $\sim 14$  fs) au foyer de l'objectif de microscope. (c) Spectre du laser (S.L.) au foyer de l'objectif de microscope et les phases spectrales du troisième ordre de  $15000\text{fs}^3$  (décalée vers le bleu D.B. et décalée vers le rouge D.R.) correspondant aux différentes formes d'impulsions utilisés dans l'expérience d'imagerie. La phase spectrale décalée vers le rouge est antisymétrique par rapport à une fréquence correspondant à  $\lambda = 840$  nm et celle décalée vers le bleu est antisymétrique par rapport à une fréquence correspondant à  $\lambda = 780$  nm. (d) Spectres à deux photons mesurés au foyer de l'objectif pour une impulsion quasi limitée par transformée de Fourier (L.TF), pour une phase spectrale décalée vers le bleu et vers le rouge en (c).

## 2.5. Microscopie d'un échantillon biologique dynamique avec des impulsions façonnées

---

l'objectif de microscope en utilisant des images de billes de polystyrène fluorescentes. Une bille fluorescente de  $10\text{ }\mu\text{m}$  positionnée au centre du champ de vue a été imagée en continu en utilisant un schéma d'entrelacement des images décrit dans la prochaine sous-section. Nous avons uniquement utilisé le réglage fin des tensions de contrôle du miroir galvanométrique pour faire coïncider les centres de gravité des deux images. En utilisant cette procédure nous avons obtenu une erreur de recouvrement plus petite que la résolution latérale du microscope.

### Mesure de la résolution spatiale

On peut mesurer la résolution spatiale d'un microscope à deux photons en imageant un fluorophore ponctuel, auquel cas on obtient directement la réponse impulsionnelle spatiale du système optique (Point Spread Function en anglais ou PSF). En pratique, on image un objet dont les dimensions sont petites devant la taille du volume focal d'excitation. Pour cette expérience, nous avons utilisé des billes fluorescentes de  $100\text{ nm}$  de diamètre que nous avons imagées en 3D à la fois au centre du champ de vue et sur les bords. La Fig. 2.19 représente les PSF axiale et latérale correspondant aux faisceaux diffractés par les deux positions de SLM 2D (haute et basse). Ces données montrent que notre schéma de façonnage est compatible avec l'imagerie microscopique avec une résolution axiale de  $2\text{ }\mu\text{m}$  et une résolution latérale de  $0.49\text{ }\mu\text{m}$ .

### Imagerie multiplexée avec deux formes d'impulsions

Le montage expérimental est représenté Fig. 2.17. Le train d'impulsions était tout d'abord envoyé vers le façonneur d'impulsions commutable puis dans le microscope à balayage. Avec une efficacité globale du façonneur d'impulsions de l'ordre de 25 %, nous disposons d'une puissance moyenne de l'ordre de 15 mW au foyer de l'objectif de microscope. Nous avons fait l'acquisition simultanée de paires d'images avec des formes d'impulsions différentes en balayant chaque ligne deux fois et en commutant la position du miroir galvanométrique entre deux lignes. Les formes des fonctions utilisées pour contrôler les trois miroirs galvanométriques (X, Y dans le microscope et G dans la ligne 4f) sont représentées Fig. 2.17. Les images correspondant aux deux formes d'impulsions ont été obtenues en désentrelaçant les données. Ce schéma d'acquisitions entrelacées rend possible l'imagerie simultanée à l'échelle de la milliseconde avec une

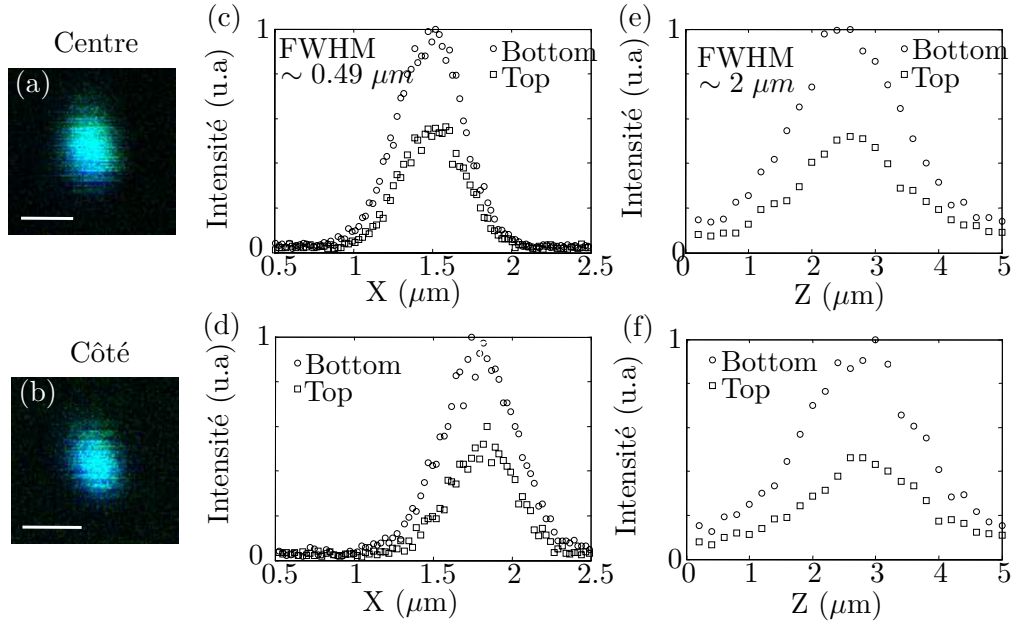


Figure 2.19: (a) et (b): Images de billes de 100 nm situées (a) au centre et (b) sur les bords du champ de vue. La barre d'échelle correspond à 1  $\mu\text{m}$ . Chaque image a été obtenue en mélangeant deux images: l'une a été prise avec la phase spectrale décalée vers le rouge (en vert) et l'autre avec la phase spectrale décalée vers le bleu (en bleu). (c), (d): PSF en intensité radiales mesurées à partir des images de billes représentée en (a) et (b) et correspondant aux faisceaux diffractés par la position haute (top) et basse (bottom) du SLM 2D. La largeur à mi-hauteur est de 0.49  $\mu\text{m}$ . (e), (f): PSF en intensité axiales mesurées avec les mêmes billes. La largeur à mi-hauteur est de 2  $\mu\text{m}$ .

reproductibilité spatiale pixel à pixel entre deux images. Par conséquent, des opérations comme des combinaisons linéaires des images ont été possibles.

### Microscopie de fluorescence sélective d'un embryon en développement avec des impulsions façonnées

Nous allons maintenant voir que notre dispositif peut produire des images multiplexées de tissus évoluant rapidement avec une résolution micrométrique.

Nous avons imagé des embryons vivants de *Drosophila melanogaster* pendant l'étape de gastrulation. Durant cette étape, les tissus (blastoderme) se réorganisent en une structure à trois couches par un mouvement d'ensemble complexe des cellules [170]. Au début de la gastrulation, les cellules forment une couche unique distribuées à la périphérie de l'embryon de forme ovoïde (500  $\mu\text{m}$  x 200  $\mu\text{m}$ ). Pendant l'acquisition des images, les embryons sont maintenus dans une solution tampon phosphate salin

## 2.5. Microscopie d'un échantillon biologique dynamique avec des impulsions façonnées

(Phosphate Buffered Saline en anglais ou PBS) à température ambiante ( $20 \pm 1$  °C). Ces drosophiles sont issues d'une variété transgénique dont les noyaux cellulaires sont marqués avec la protéine fluorescente eGFP [171]. Les embryons présentent une distribution compartimentée de fluorophores ce qui les rend particulièrement bien adaptés pour valider notre approche. Le centre de l'embryon est rempli par le stock vitellin qui contient une grande concentration de vésicules de stockage, dont certaines ont une forte fluorescence endogène bleue. Les spectres d'excitation à deux photons de la eGFP et de la fluorescence endogène sont suffisamment différents pour être sondés sélectivement en façonnant le spectre à deux photons de façon adaptée [23].

Nous avons enregistré une séquence d'images 2D et 3D du pôle postérieur de l'embryon pendant la phase de convergence-extension de la gastrulation, un processus rapide qui implique une réorganisation spatiale à grande échelle des tissus et des réserves vitellines, notamment dans les régions postérieure et dorsale des embryons. Les Fig. 2.20(a) et (b) montrent des images enregistrées simultanément avec deux formes d'impulsions différentes démontrant l'excitation préférentielle de eGFP ou de la fluorescence endogène. L'image de la Fig. 2.20(a) a été obtenue avec une phase antisymétrique centrée à 780 nm (représentée Fig. 2.18(b)) qui permet une excitation accrue de la fluorescence endogène (bleue). L'image de la Fig. 2.20(b) a été obtenue de façon quasi-simultanée en utilisant une phase antisymétrique centrée à 840 nm (représentée Fig. 2.18(b)) qui permet une excitation accrue de eGFP localisée dans les noyaux cellulaires. Dans cette expérience, nous avons fait l'acquisition d'images de 580 lignes de 620 pixels chacune à une fréquence pixel de 75 kHz, et une image a été enregistrée toutes les 7 secondes pendant 40 minutes. Le temps d'acquisition par ligne de 12 ms (limité par le choix du nombre de pixels) définit la résolution temporelle de l'excitation multiplexée. Notons que le temps d'acquisition des images de l'ordre de 6 secondes par image est une amélioration de plus de deux ordres de grandeur par rapport au schéma de commutation basé sur un façonneur d'impulsions acousto-optique [23] et que la fréquence pixel est similaire à celle typiquement utilisée dans les microscopes à deux photons standards. Les Fig. 2.20(c) et (d) représentent des combinaisons linéaires des images (a) et (b) pour séparer les composantes de fluorescence basées sur leurs spectres d'absorption. Ces images montrent qu'un excellent recouvrement entre les deux faisceaux a été obtenu sur tout le

champ de vue et illustrent la sélectivité obtenue par un façonnage en phase spectrale. Les Fig. 2.20(e) et (f) présentent des images obtenues en combinant (c) et (d) à deux différentes étapes de développement de l'embryon. Les kymographes (projections spatio-temporelles) révèlent les mouvement corrélés des cellules Fig. 2.21(b) et des structures vitellines sous-jacentes (a) pendant les mouvements d'extension. Enfin, la Fig 2.21(c) est extraite d'un film <http://www.opticsexpress.org/viewmedia.cfm?URI=oe-17-15-12741-1> qui montre une reconstruction 3D du pôle postérieur d'un autre embryon imagé depuis le côté dorsal pendant 32 minutes couvrant la phase de convergence-extension. Une image 3D a été enregistrée toutes les minutes. Finalement, ces données montrent que notre système permet une imagerie multiphoton entrelacée avec deux formes d'impulsions arbitraires, une vitesse d'acquisition standard et une résolution micrométrique dans des tissus intacts.

### 2.5.4 Conclusion sur l'expérience

Les résultats exposés sont une étape importante vers une application des méthodes de façonnage d'impulsions à spectre large à la microscopie non-linéaire de plusieurs signaux. Le schéma d'imagerie quasi simultanée décrit ici permet une visualisation des changements biologiques dynamiques dans des tissus en développement avec une résolution spatiale micrométrique et une simultanéité milliseconde. En utilisant un SLM 2D combiné avec un miroir galvanométrique pour la commutation nous sommes parvenus à améliorer de deux ordres de grandeur la vitesse d'acquisition des images par rapport aux approches précédentes. De plus, la période pixel dans notre expérience était comparable à celle des microscopes à deux photons standards. Notons que l'efficacité globale du montage expérimental décrit ici (donnant 15 mW et 14 fs au foyer) pourrait être améliorée en augmentant la puissance du laser et sa bande spectrale. Des impulsions plus courtes permettraient d'adresser d'autres fluorophores biologiques pertinents, étant donné que la phase spectrale est parfaitement contrôlée dans le plan focal. Une plus grande puissance du laser permettrait une imagerie plus en profondeur dans les milieux diffusant et / ou des temps d'acquisition plus courts.



## 2.5. Microscopie d'un échantillon biologique dynamique avec des impulsions façonnées

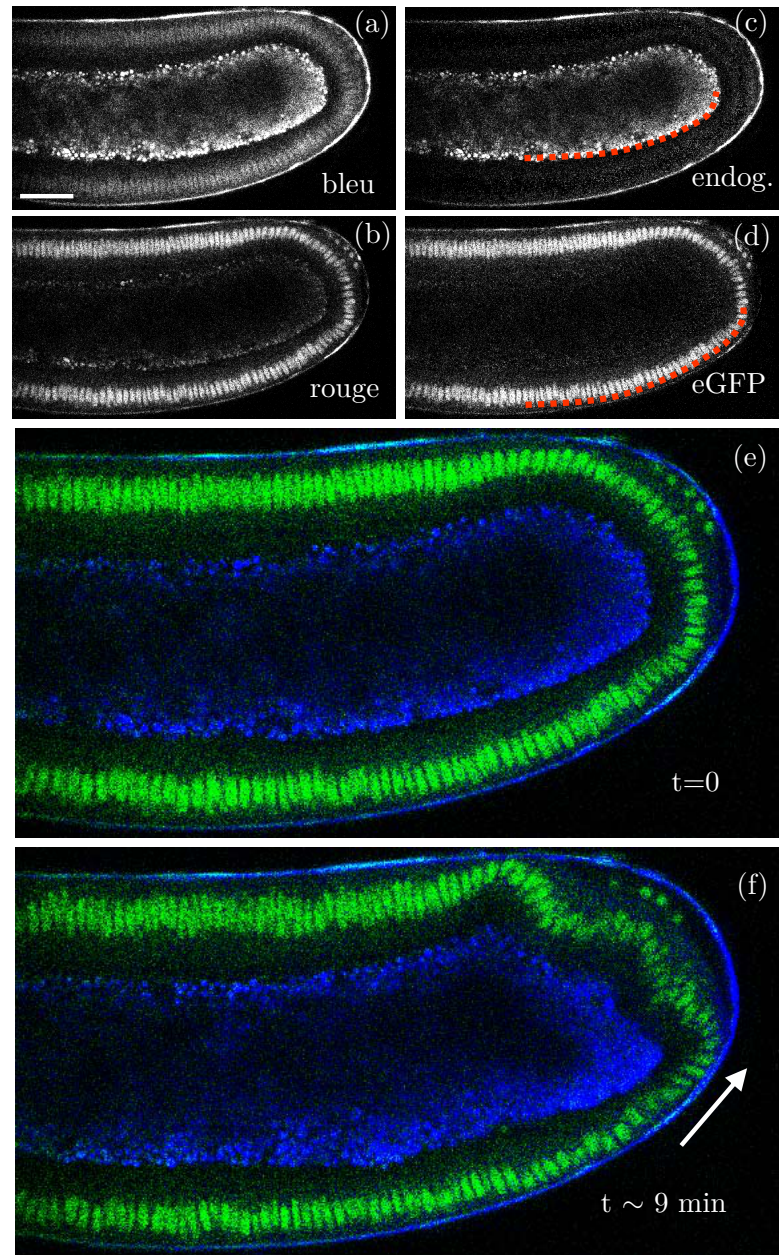


Figure 2.20: Imagerie multiplexée *in vivo* d'un embryon de *Drosophile* exprimant eGFP en utilisant (a) une phase spectrale décalée vers le bleu pour une excitation préférentielle de la fluorescence endogène à 780 nm et (b) une phase spectrale décalée vers le rouge pour une excitation préférentielle de eGFP à 840 nm. La face dorsale est orientée vers le haut. (c), (d): combinaisons linéaires des images (a) et (b) pour séparer les deux composantes de fluorescences (déconvolution spectrale ou spectral unmixing en anglais). (e), (f): images obtenues en combinant (c) et (d) à deux différentes étapes de développement de l'embryon. L'extension des tissus est visible au niveau du pôle postérieur de l'embryon durant la phase de convergence-extension (flèche blanche). Barre d'échelle: 50  $\mu\text{m}$ .

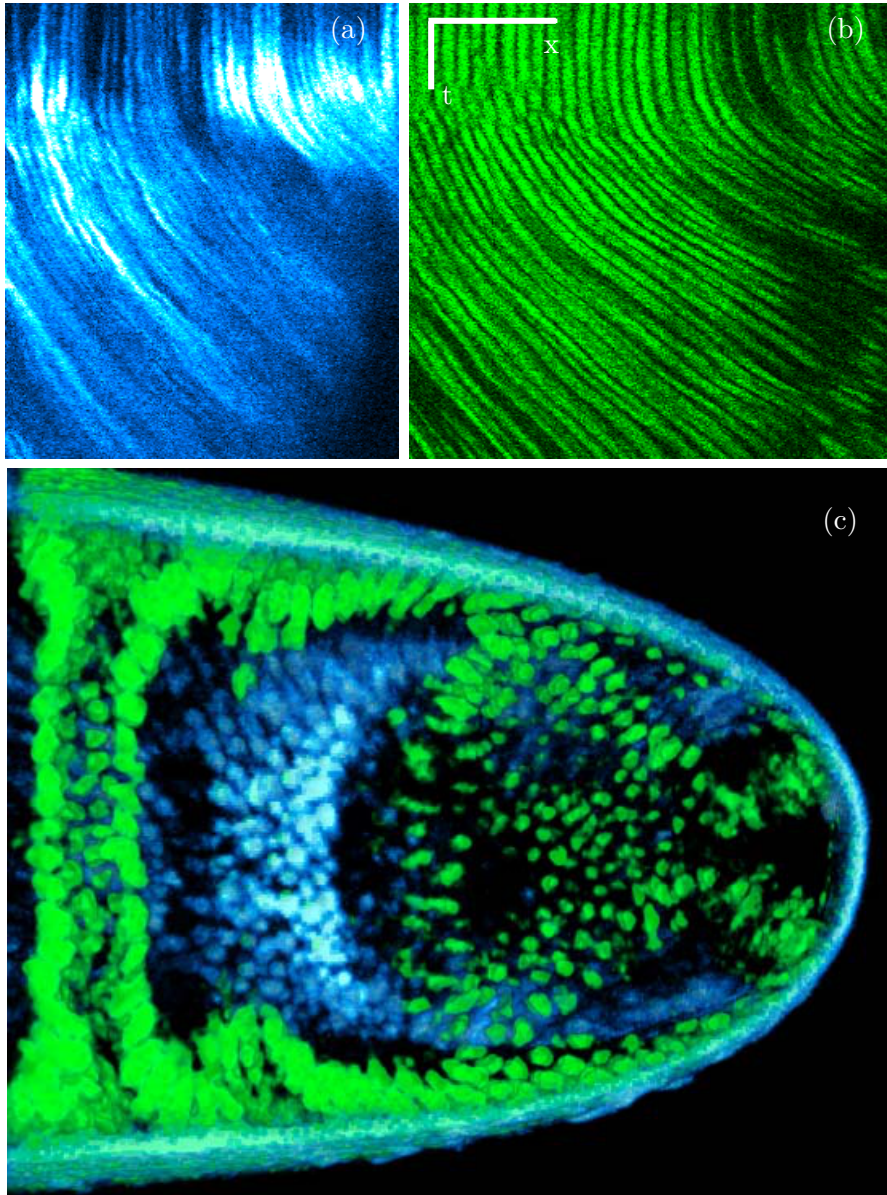


Figure 2.21: (a), (b): Kymographes (projections spatio-temporelles) le long des lignes en pointillés rouges indiquées sur la Fig. 2.20(c) et (d). Ces projections révèlent les mouvement corrélés de cellules (b) et des structures vitellines sous-jacentes (a) pendant les mouvement d'extension. (c) est une image extraite d'un film (<http://www.opticsexpress.org/viewmedia.cfm?URI=oe-17-15-12741-1>) qui montre une reconstruction 3D du pôle postérieur d'un autre embryon imagé depuis le côté dorsal pendant 32 minutes pendant la phase de convergence-extension. Une image 3D a été enregistrée tout les minutes. Barres d'échelle: 50  $\mu\text{m}$  (X) et 5 min (temps).

## **2.6 Façonnage d'impulsions avec des prismes pour la microscopie à deux photons multiplexée**

Nous allons maintenant voir que le façonnage de phase spectrale appliquée à la microscopie à deux photons sélective comme discuté plus haut ne requiert pas nécessairement l'utilisation d'un façonneur d'impulsions programmable [20,23,68,109,164] mais peut être obtenu en utilisant des matériaux dispersifs placés en amont du microscope [105]. Cette méthode de façonnage, à la fois simple et efficace, se révèle particulièrement bien adaptée pour implémenter un schéma de multiplexage temporel précédemment développé dans le contexte de la microscopie multiphoton multifocale [172–174] et celui de la microscopie CARS [175,176].

### **2.6.1 Façonner avec des éléments dispersifs**

Comme nous l'avons vu avec l'expérience précédente, une phase spectrale du troisième ordre convient parfaitement pour une expérience de microscopie à deux photons sélective. L'avantage d'utiliser une telle phase est qu'il est possible de la produire avec de simples éléments optiques dispersifs à la place d'un façonneur d'impulsions programmable plus complexe.

#### **Un compresseur à prismes et un morceau de verre**

Comme nous l'avons rappelé au premier chapitre, il est connu qu'un compresseur à prismes produit non-seulement une phase du second ordre mais aussi une phase du troisième ordre significative [33]. Après compensation de la phase du deuxième ordre introduite par les optiques du microscope avec le compresseur à prismes, il reste donc une phase spectrale essentiellement du troisième ordre. La Fig. 2.22 montre ainsi qu'un compresseur à prismes produit un retard de groupe décroissant avec la fréquence mais de forte courbure (a). Les optiques du microscope produisent quant à elles un retard de groupe quasi linéaire, croissant avec la fréquence (b). En supposant une impulsion laser incidente limitée par transformée de Fourier (retard de groupe constant), le retard de groupe total  $\tau_1(\omega)$  (Fig. 2.22(a+b)) est donc une fonction parabolique avec une courbure

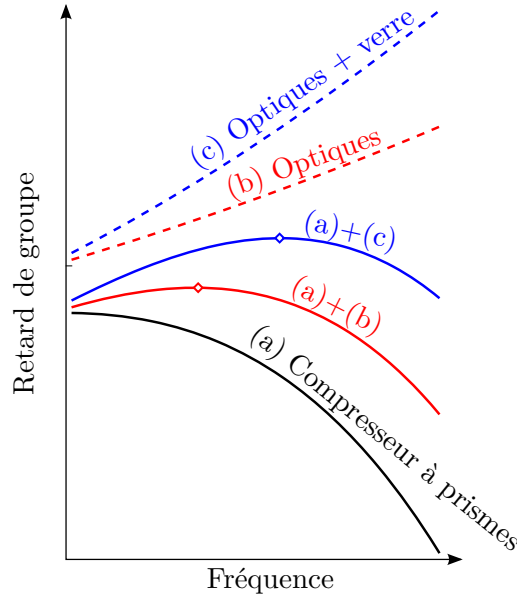


Figure 2.22: Représentation schématique du retard de groupe introduit par (a) le compresseur à prismes, (b) les optiques du microscope et (c) les optiques du microscope et un morceau de verre dispersif placé sur le trajet du faisceau et le retard de groupe total sans (a+b) et avec (a+c) le verre dispersif. La dispersion supplémentaire se traduit par un décalage de l'extremum (losange).

négative:

$$\tau_1(\omega) = \frac{1}{2}\varphi''' \times (\omega - \omega_1)^2 \quad (2.31)$$

La fréquence centrale de cette parabole,  $\omega_1$ , peut facilement être décalée vers les hautes fréquences en introduisant une dispersion linéaire supplémentaire, par exemple, par l'intermédiaire d'un morceau de verre inséré dans le chemin optique (c). Notons  $\varphi''_{\text{verre}}$  la quantité de phase du second ordre introduite par le verre. Si on néglige les termes d'ordres supérieurs, négligeables par rapport à ceux du compresseur à prismes, alors le retard de groupe introduit par le morceau de verre s'écrit  $\varphi''_{\text{verre}}(\omega - \omega_0)$  où  $\omega_0$  est la fréquence centrale du laser. Le retard de groupe total devient:

$$\tau_2(\omega) = \tau_1(\omega) + \varphi''_{\text{verre}} \times (\omega - \omega_0) = \frac{1}{2}\varphi''' \times \left( \omega - \omega_1 + \frac{\varphi''_{\text{verre}}}{\varphi'''} \right)^2 + Cst \quad (2.32)$$

La nouvelle parabole  $\tau_2(\omega)$  est donc centrée à la fréquence  $\omega_2 = \omega_1 - \varphi''/\varphi'''$ , une fréquence plus grande que  $\omega_1$  car  $\varphi''' < 0$ . L'étape finale de commutation rapide entre





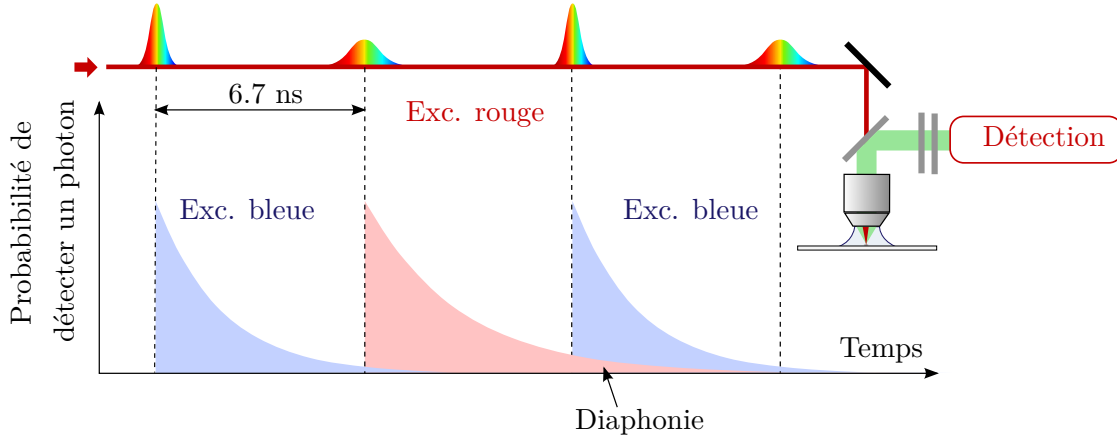


Figure 2.24: Représentation schématique de la synchronisation de la détection des signaux de fluorescence avec le train d'impulsions incident.

entrelacés. Cette configuration produit un train d'impulsions à 150 MHz avec une forme d'impulsion qui varie d'une impulsion à l'autre, ce qui correspond à une fréquence de commutation de 150 MHz. Le signal de fluorescence excitée à deux photons est ensuite mesuré avec un schéma de détection en comptage de photons, synchronisé avec le train d'impulsions à 150 MHz avec deux compteurs différents pour les impulsions paires et impaires [172–174]. Ce schéma de détection est représenté de façon schématique Fig. 2.24. Selon le moment où est détecté un photon de fluorescence celui-ci est attribué au canal d'excitation approprié. Remarquons que pour des temps de vie de fluorescence trop longs, les photons émis 6.7 ns après l'impulsion excitatrice (pour un train d'impulsions à 150 MHz) seront attribués au mauvais canal d'excitation, ce qui contribuera à une diaphonie entre les deux canaux.

### 2.6.3 Spectres à deux photons

La Fig. 2.25 montre les spectres à deux photons associés aux deux formes d'impulsions, mesurés avec un cristal doubleur de BBO au foyer de l'objectif de microscope. Bien que les deux formes d'impulsions aient des spectres à un photon quasi identiques, leurs spectres à deux photons sont fortement localisés vers les courtes ou les grandes longueurs d'onde, comme cela est souhaité. D'après l'espace entre les deux pics et l'Eq. 2.32 la phase spectrale du troisième ordre correspondante est approximativement de  $-29000 \text{ fs}^3$ . La petite composante oscillante observée du côté des hautes fréquences de chaque spectre a pour origine une phase résiduelle du quatrième ordre (retard de groupe du

## 2.6. Façonnage d'impulsions avec des prismes pour la microscopie à deux photons multiplexée

troisième ordre). Pour en comprendre l'origine, revenons à l'interprétation de la forme du spectre à deux photons en termes de retard de groupe. Dans le cas d'une phase du troisième ordre à laquelle on ajoute un petit terme du quatrième ordre, c'est-à-dire un retard de groupe parabolique avec un petit terme cubique, il existe deux processus pouvant générer une nouvelle fréquence  $2\omega$  dans le spectre à deux photons: le doublage d'une composante spectrale  $\omega$  ou bien l'addition des deux composantes spectrales  $\omega_a$  et  $\omega_b$  présentes simultanément dans le cristal telle que  $\omega_a + \omega_b = 2\omega$ . Remarquons que dans le cas d'un retard de groupe purement parabolique, le deuxième processus conduit à la génération de la fréquence  $\omega_a + \omega_b$  qui est dans ce cas toujours égal à  $2\omega_1$  et ne contribue donc qu'à cette fréquence. Dans le cas où il y a en plus un terme cubique, le retard de groupe total n'est plus parfaitement symétrique et le processus d'addition des composantes spectrales ne produit plus une unique fréquence  $2\omega_1$  mais une fréquence qui évolue linéairement au cours du temps. Dans ce cas, il y a donc deux chemins pour produire une fréquence du spectre doublé: le doublage d'une composante à un instant  $\tau_1$  et une addition de deux fréquences beaucoup plus éloignées à un instant ultérieur  $\tau_2$ . On s'attend donc à des franges spectrales comme observé. Malgré ce petit terme résiduel oscillant, la Fig. 2.25 démontre que des spectres à deux photons adaptés à la microscopie à deux photons sélective peuvent être produits au foyer de l'objectif de microscope, sans façonneur d'impulsions programmable. Malgré l'efficacité de notre système de façonnage non optimisée (55%), en raison de prismes trop petits qui coupaient les bords du spectre, nous sommes parvenus à obtenir des impulsions façonnées avec une puissance moyenne de 40 mW au foyer de l'objectif de microscope. Il a ensuite été possible d'acquérir des images d'échantillons biologiques avec une fréquence pixel de 120 kHz.

### 2.6.4 Microscopie à deux photons sélective d'un embryon en développement

Nous allons valider ce système d'imagerie avec deux excitations simultanées en observant à nouveau un embryon de *Drosophile* en développement (Fig. 2.26). Les impulsions correspondant à un spectre à deux photons décalé vers le bleu sont utilisées pour exciter sélectivement les fluorophores endogènes présents dans les stocks vitellins (yolk en anglais) de l'embryon (Fig. 2.26(a)), tandis que les impulsions avec un spectre à deux

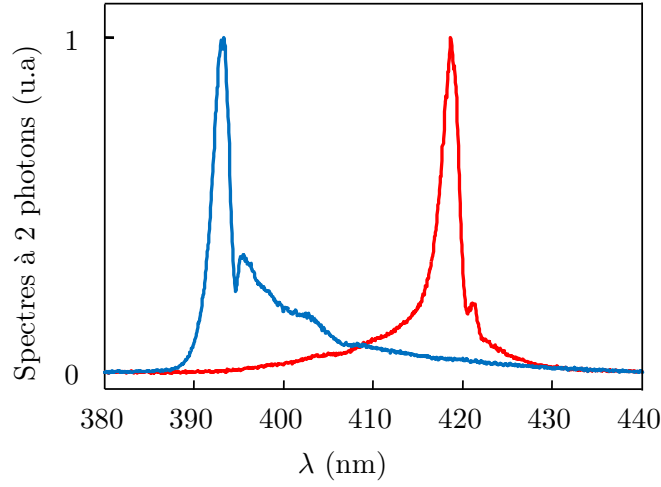


Figure 2.25: Spectres à deux photons mesurés au foyer avec un cristal de BBO correspondant aux impulsions utilisées pour les images de la Fig. 2.26.

photons décalé vers le rouge donnent une excitation préférentielle de la protéine fluorescente eGFP qui marque les noyaux cellulaires (Fig. 2.26(b)). La Fig. 2.26(d) est une image composite combinant les images (a) et (b). Le fait que les couleurs ne sont pas purement vertes ou bleues indique qu'il y a une diaphonie entre les deux canaux (ou cross-talk en anglais). Cela peut être attribué à plusieurs facteurs. Premièrement, le recouvrement entre les spectres d'excitation à deux photons des deux fluorophores et deuxièmement le fait que le temps de vie des niveaux excités des fluorophores sont de l'ordre de quelques nanosecondes et les temps de réponse des tubes photomultiplicateurs et de l'électronique de commutation sont de l'ordre de la nanoseconde. Comme ces images sont parfaitement simultanées, le contraste peut être amélioré par combinaison linéaire en utilisant des mesures précédentes de l'efficacité d'excitation relative des deux fluorophores [23, 105]. Notons qu'un meilleur contraste serait aussi obtenu avec des signaux non linéaires instantanés (par exemple la génération de seconde harmonique) ou avec un taux de répétition plus faible.

### Conclusion sur l'expérience

Finalement, bien que moins polyvalent que les façonneurs d'impulsions programmables, ce schéma de façonnage basé sur des éléments optiques dispersifs permet d'implémenter la microscopie à deux photons *in vivo* sélective. De plus, le fait que la seconde forme



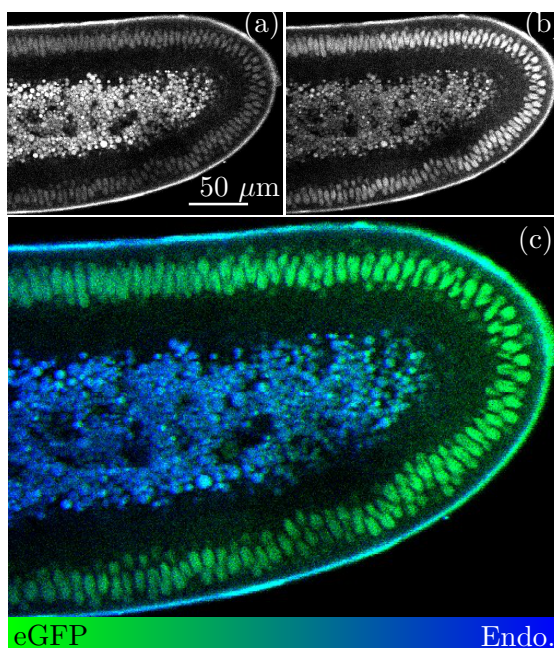


Figure 2.26: Microscopie à deux photons avec des impulsions façonnées. (a), (b) Images de Drosophiles obtenues avec des impulsions excitant préférentiellement (a) la fluorescence endogène et (b) excitant préférentiellement eGFP. (c) Combinaison de (a) (canal bleu) et (b) (canal vert). <http://www.opticsinfobase.org/viewmedia.cfm?URI=ol-35-20-3444-1> est un film.

d'impulsion soit obtenue à partir de la première par le simple ajout d'un morceau de verre rend possible le multiplexage temporel avec une fréquence de commutation de 150 MHz entre les deux formes d'impulsions. Comparé aux autres implémentations de microscopie à deux photons sélective, le montage expérimental décrit ici est plus simple et bénéficie d'une fréquence de commutation bien plus rapide.

## 2.7 Microscopie à deux photon multiplexée de trois fluorophores

L'expérience d'imagerie sélective décrite à la section précédente [105] montre que le multiplexage temporel combiné avec un dispositif de façonnage d'impulsions basé sur des éléments dispersifs est une approche simple et efficace pour implémenter la microscopie à deux photons sélective. L'expérience que nous allons décrire ici reprend le même schéma expérimental pour imager simultanément trois fluorophores.

### 2.7.1 Imager plus de fluorophores

Nous explorons au laboratoire deux voies complémentaires pour augmenter le nombre de fluorophores que l'on peut imager simultanément avec notre dispositif. La première consiste à élargir le spectre de notre source laser afin de produire autant de formes d'impulsions que de fluorophores. Cette approche nécessite aussi de diminuer la taux de répétition du laser dans la mesure où l'ordre de grandeur typique des temps de vie de fluorescence est de quelques nanosecondes. En effet, avec un taux de répétition de laser de  $F_{rep}$ , la durée des fenêtres de détection pour chacun des fluorophores parmi  $N$  est de  $\frac{1}{NF_{rep}}$ , soit, avec un taux de répétition de 75 MHz, une fenêtre de 6.7 ns pour deux fluorophores et 4.4 ns pour trois. La deuxième approche possible, que nous allons décrire ici, exploite à la fois les différences de spectres d'excitation à deux photons des fluorophores mais aussi les différences en terme de spectres d'émission [23].

### 2.7.2 Multiplexage temporel

Le multiplexage temporel [105, 172–176] que nous utilisons pour réaliser l'acquisition simultanée des différents signaux (Fig. 2.28) repose sur un entrelacement de deux trains d'impulsions à 75 MHz. Cela implique que l'un des trains se propage sur une distance supplémentaire de 2 m par rapport au train principal (Fig. 2.23). Cette propagation supplémentaire se traduit naturellement par un décalage du point focal dans la direction axiale après l'objectif de microscope. Les formules de conjugaison des faisceaux gaussiens (Eq. 1.55) permettent d'évaluer l'écart entre les points focaux des deux trains. On obtient un écart de l'ordre de 8 nm entre les deux volumes focaux pour une composante spectrale de longueur d'onde  $\lambda_0 = 800$  nm, un objectif de focale  $f_{obj} = 2$  mm, une distance de propagation totale  $d_1 = 10$  m et  $d_2 = 12$  m mètre. Comparé à l'extension axiale du volume d'excitation typiquement de l'ordre de  $2 \mu\text{m}$ , cet écart est négligeable. Dans cette nouvelle expérience, nous avons néanmoins entrepris de compenser l'effet de cette propagation additionnelle avec deux télescopes consécutifs en configuration 4f chacun (Fig. 2.27) de façon à ce que le grandissement total soit de  $(-1)^2 = 1$ . Cela permet d'éviter tout artefact lié par exemple à une dispersion angulaire des différentes composantes spectrales ou encore à un bruit du pointé du laser.

Remarquons qu'avec deux formes d'excitation et deux canaux de détection (Fig. 2.28),

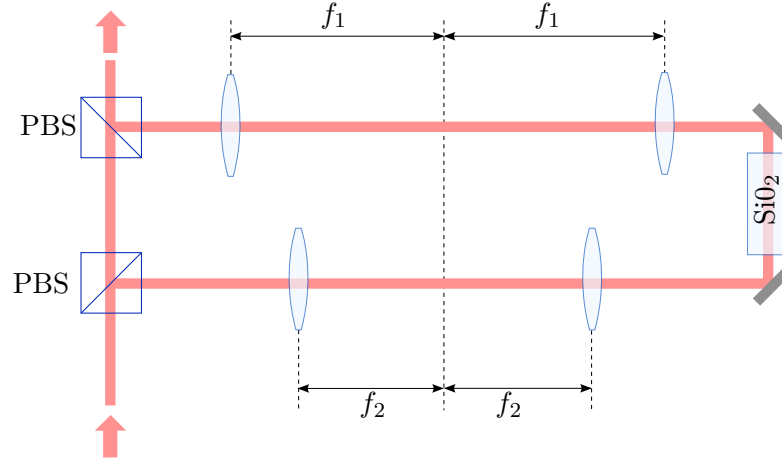


Figure 2.27: Deux télescopes, l'un avec deux lentilles de focale  $f_1 = 30$  mm (LA1484-B, Thorlabs, USA) et l'autre  $f_2 = 20$  mm (LA1253-B, Thorlabs, USA), compensent la propagation additionnelle de 2m du deuxième faisceau ( $4f_1 + 4f_2 = 2$  m) dans notre schéma de multiplexage temporel des impulsions.

nous enregistrons quatre images simultanément.

### 2.7.3 Choix des bandes spectrales de détection

L'équipe de Jean Livet de l'Institut de la vision nous a fourni un ensemble de cellules HEK (Human Embryonic Kidney) transfectées séparément avec trois fluorophores bleus différents: TagBFP marquant la tubuline, EBFP2.0 [177] marquant les noyaux, et Teal [178] (aussi appelée mTFP1.0) marquant le cytoplasme. Nous avons utilisé ces cellules fixées pour montrer que notre système d'imagerie, couplé avec une source laser commercial ayant un spectre de 100 nm de largeur à mi-hauteur, permettait d'imager simultanément et sélectivement ces trois fluorophores. Les spectres d'émission et d'absorption à deux photons de ces fluorophores (extraits de [179,180]) sont représentés Fig. 2.29. Au niveau des spectres d'émission Fig. 2.29(a), on peut distinguer deux régions préférentielles: la zone des longueurs d'onde inférieures à 500 nm et celle des longueurs d'onde supérieures à 500 nm. En effet, les fluorophores EBP2.0 et TagBFP émettent plutôt dans le bleu ( $\lambda_{ém} < 500$  nm), tandis que Teal émet plutôt dans le vert ( $\lambda_{ém} > 500$  nm). Nous avons donc élaboré un schéma de détection comptant deux tubes photomultiplicateurs, un miroir dichroïque de longueur d'onde de coupure à 495 nm ainsi que des filtres passe-bas pour éliminer les photons du laser ( $\lambda < 680$  nm) et des filtres passe-bande afin de parfaitement définir les bandes spectrales de détection, comme représenté Fig. 2.28.

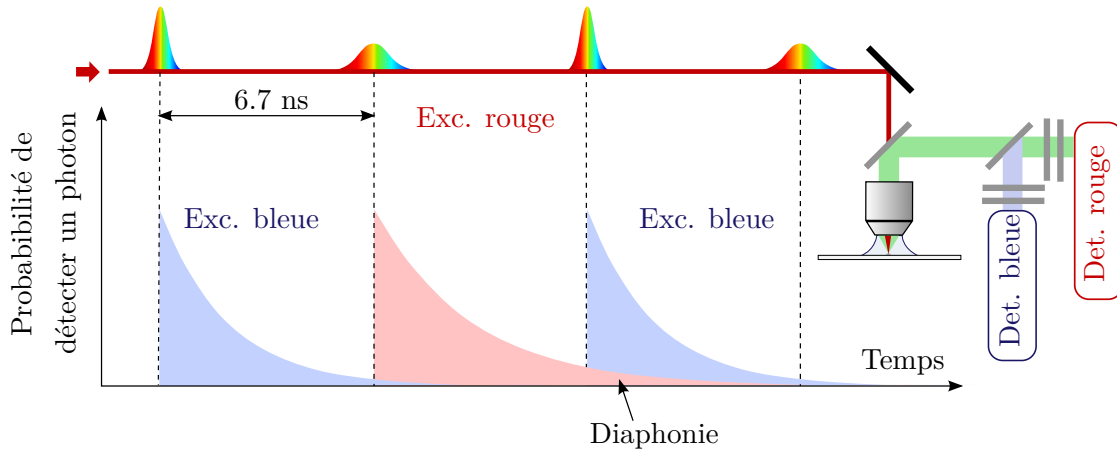


Figure 2.28: Représentation schématique de la synchronisation de la détection des signaux de fluorescence avec le train d'impulsions incident.

La détection dite *bleue* avait un filtre passe-bande 420-500 nm et la détection dite *rouge* était équipée d'un filtre passe-bande 500-600 nm. Avec ce schéma de détection il est donc *a priori* seulement possible de séparer Teal des deux autres fluorophores, car ces deux derniers ont des spectres d'émission trop proches. Notre avons donc exploité la différence entre les spectres d'excitation à deux photons des fluorophores EBFP2.0 et TagBFP pour pouvoir les différencier.

#### 2.7.4 Formes des spectres à deux photons

L'utilisation d'un compresseur à prismes pour produire la phase du troisième ordre permet *a priori* de choisir à la fois la position du pic d'excitation dans le spectre à deux photons et la largeur de ce pic. La position des pics peut simplement être ajustée en réglant la distance entre les prismes ainsi que la quantité de verre introduite dans le deuxième chemin. En ce qui concerne la largeur des pics d'excitation, il faut distinguer l'élargissement de l'étrécissement, c'est-à-dire l'action de les rendre plus étroits. L'étrécissement nécessite une augmentation de la quantité de phase du troisième ordre, ce qui peut être obtenu en augmentant la dispersion du montage (par exemple avec le premier prisme du compresseur) et implique de fait une compensation par le compresseur à prismes ( $\varphi^{(3)}/\varphi^{(2)} \approx 4.4$  fs pour des prismes en N-SF14). En pratique, il faut des prismes relativement grands pour pouvoir augmenter la distance inter-prismes de façon conséquente car avec des spectres larges ( $> 200$  nm bord à bord), l'étalement du spectre couvre rapidement la section du deuxième prisme. Dans notre cas, avec des

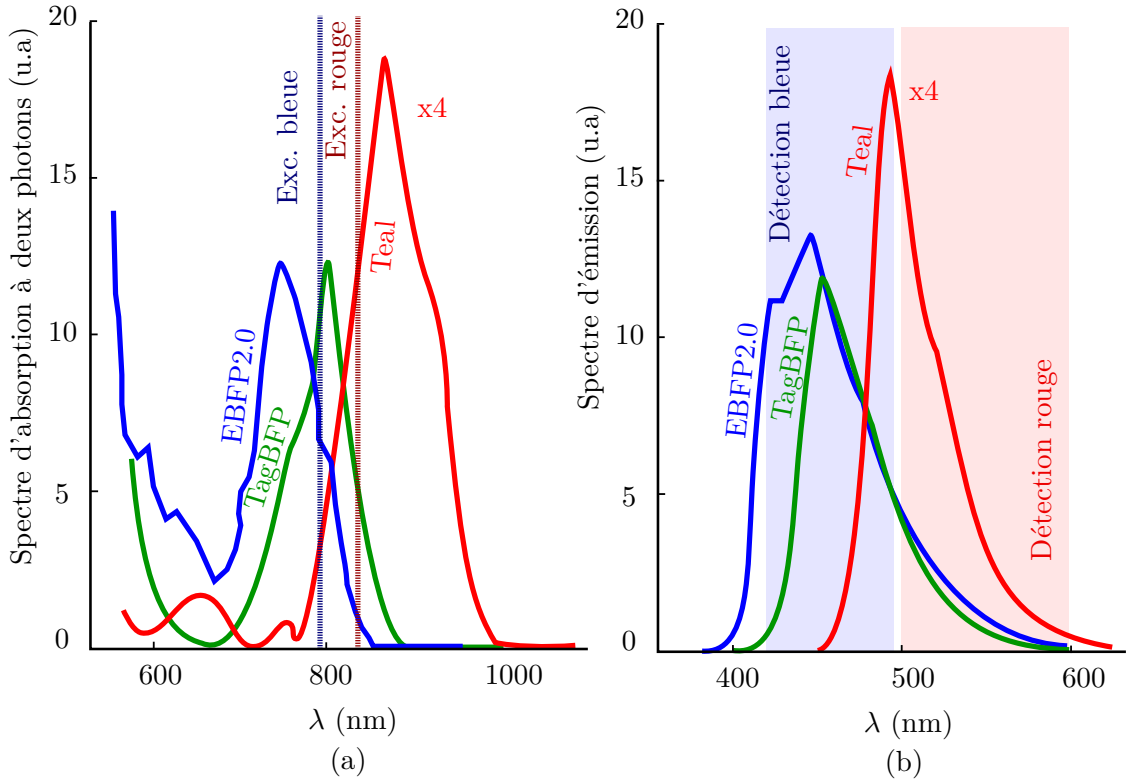


Figure 2.29: (a): Spectres d'absorption à deux photons des fluorophores EBFP2.0, TagBFP et Teal adaptés de [179, 180]. Les lignes en pointillés indiquent la position des spectres d'excitation à deux photons. (b): Spectres d'émission des fluorophores EBFP2.0, TagBFP et Teal adaptés de [179, 180]. Le rectangle bleu indique la fenêtre spectrale de détection du premier tube photomultiplicateur et la fenêtre rose celle du deuxième.

prismes d'arêtes de 2.5 cm et un spectre de 200 nm, les prismes étaient déjà trop petits pour simplement compenser la phase quadratique des optiques du microscope et une partie du spectre a dû être coupée du côté des plus courtes longueurs d'onde. La Fig. 2.30 montre les spectres mesurés au foyer de l'objectif de microscope (0.8 NA 40x) correspondant aux deux trains d'impulsions. Remarquons que la troncature des spectres par le compresseur à prismes est visible du côté des hautes fréquences et que les spectres ne sont pas parfaitement identiques à cause du chromatisme des cubes séparateurs de polarisation pourtant spécifiés pour des spectres larges (PBS102, Thorlabs, USA). Pour l'élargissement des pics d'excitation à deux photons il faut diminuer la quantité de phase du troisième ordre ce qui implique logiquement une réduction de la phase de second ordre à compenser avec la paire de prismes. Cette réduction ne peut s'opérer que par l'ajout de nouveaux composants optiques, avec un compresseur à réseaux par

exemple, et complexifie le dispositif.

Nous avons donc cherché à déterminer la position optimale des pics d'excitation, en supposant la largeur des pics fixée ( $\varphi''' \sim -25000 \text{ fs}^3$ ,  $\varphi^{(4)} \sim -60000 \text{ fs}^4$ ). Pour cela, nous avons simulé les niveaux de signaux de TagBFP et EBFP2.0 ainsi que le rapport de leurs signaux pour différentes positions des pics d'excitation (Fig. 2.33) à partir des spectres d'excitation 2PEF des deux fluorophores (Fig. 2.29(b)). Les choix des positions des pics d'excitation sont représentés sur la Fig. 2.33 et résultent d'un compromis entre contraste maximal et niveau de signal acceptable. Un bon compromis a été déterminé pour une position des pics à 396 nm et 419 nm. La Fig. 2.31 montre les spectres doublés obtenus avec le même schéma expérimental que pour l'expérience précédente (Fig. 2.23), avec dans le trajet secondaire un morceau de silice fondue de 7.5 cm et quatre lentilles en N-BK7. Sur la même figure, les spectres doublés simulés ont été représentés. Pour cette simulation, nous avons utilisé les spectres fondamentaux mesurés au foyer Fig. 2.30 ainsi que les phases spectrales suivantes.

- La phase du compresseur à prismes en N-SF14 a été simulée avec le modèle décrit au premier chapitre, avec une distance entre les prismes mesurée de 65 cm et la longueur d'onde la plus courte sur l'apex du deuxième prisme de 750 nm (le prisme coupe le spectre). On obtient à 800 nm:  $-10379 \text{ fs}^2$ ,  $-33016 \text{ fs}^3$ ,  $-59802 \text{ fs}^4$ ,  $-73456 \text{ fs}^5$ .
- La phase additionnelle pour l'excitation bleue est évaluée avec les formules de Sellmeier pour 7.5 cm de silice fondue (bloc de verre) et 1.06 cm de N-BK7 (épaisseur totale des quatre lentilles) et donne  $3181 \text{ fs}^2$ ,  $2397 \text{ fs}^3$  à 800 nm.
- La phase du deuxième ordre des optiques communes aux deux trajets a été ajustée de façon à positionner les pics d'excitation à 419 nm et 396 nm. La phase du troisième ordre est déduite de la phase du deuxième ordre avec un facteur 0.8, un rapport typique pour les optiques standards, ce qui donne  $7910 \text{ fs}^2$  et  $6330 \text{ fs}^3$ .

En prenant comme seul paramètre libre à ajuster la phase de second ordre introduite par les optiques du microscope, on obtient un bon accord entre les courbes théoriques et expérimentales. Remarquons notamment que les positions des pics, leurs largeurs, et les termes oscillants sont correctement modélisés. On peut donc s'appuyer sur ces

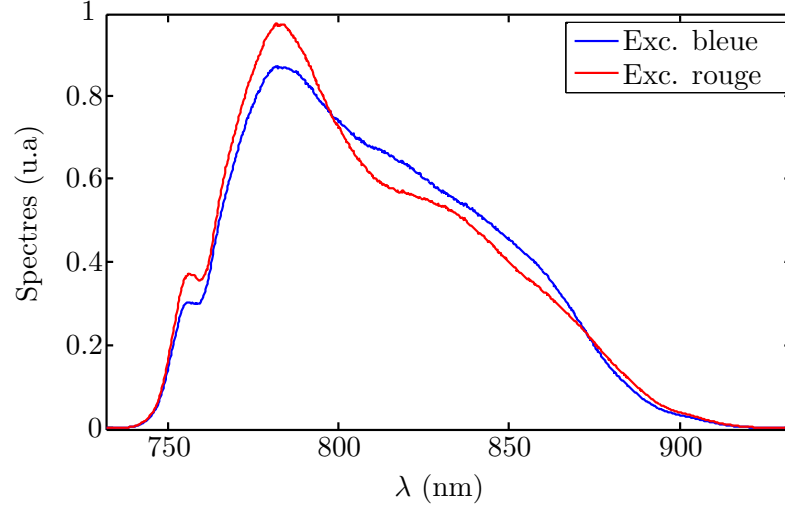


Figure 2.30: Spectres du laser mesurés au foyer de l'objectif de microscope (0.8 NA 40x) pour les deux trains d'impulsions correspondant à une excitation décalée vers le rouge et décalée vers le bleu avec une sphère intégratrice (Temps d'intégration de 200 ms et moyennés dix fois pour une puissance de 6 mW pour chaque train d'impulsions).

simulations pour estimer les phases totales correspondant aux deux excitations.

	$\varphi^{(2)}$	$\varphi^{(3)}$	$\varphi^{(4)}$	$\varphi^{(5)}$
Excitation rouge (à 838 nm)	56 fs <sup>2</sup>	-20700 fs <sup>3</sup>	-52000 fs <sup>4</sup>	-73000 fs <sup>5</sup>
Excitation bleue (à 792 nm)	121 fs <sup>2</sup>	-26000 fs <sup>3</sup>	-63000 fs <sup>4</sup>	-70000 fs <sup>5</sup>

Ces estimations des phases spectrales permettent d'évaluer l'impact du terme d'ordre 4 sur la forme des pics d'excitation. Comme nous l'avons déjà fait remarquer lors de la précédente expérience, ce terme est à l'origine d'un petit terme oscillant mais de plus, comme il brise l'antisymétrie de la phase (par rapport à  $\omega_1$ ), le processus d'excitation à deux photons n'est pas optimal à  $2\omega_1$ . En effet, comme on peut le voir sur la Fig. 2.32 qui montre les spectres simulés pour les phases spectrales estimées correspondant aux deux excitations et pour des phases spectrales nulles, les pics d'excitation n'atteignent pas le maximum mais seulement 91% et 81% de cette valeur, respectivement pour l'excitation bleue et rouge.

### 2.7.5 Microscopie d'un échantillon biologique avec trois fluorophores

Nous allons maintenant voir que notre approche permet d'imager de façon sélective trois fluorophores. Les cellules HEK que nous avons imagées ont été transfectées séparément

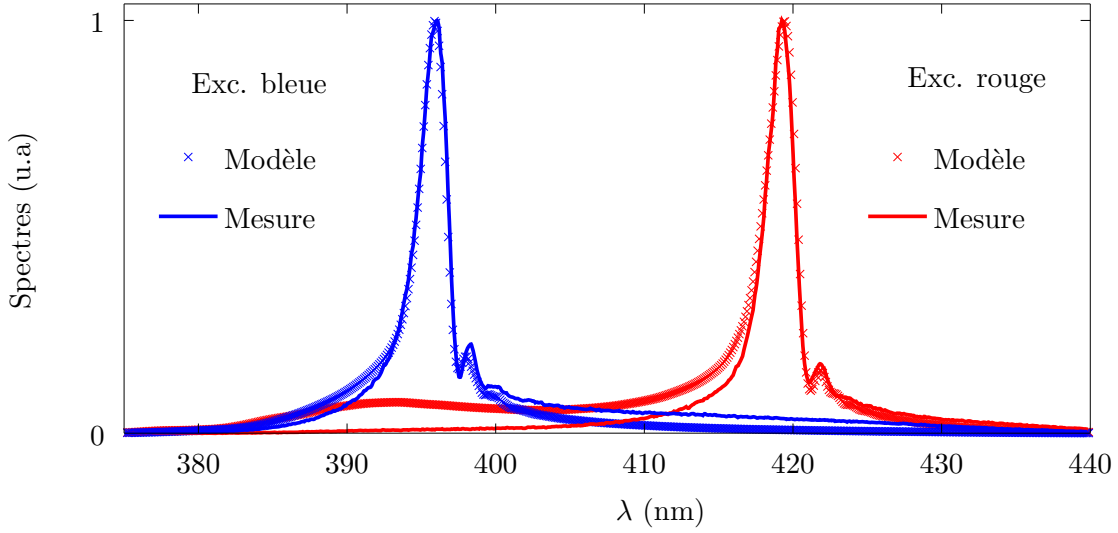


Figure 2.31: Mesures: Spectres doublés mesurés au foyer de l'objectif de microscope (0.8 NA 40x à immersion dans l'eau) avec un cristal doubleur de BBO (temps d'intégration de 10 s et moyennés deux fois) correspondant à une excitation à deux photons décalée vers le rouge (419 nm) et vers le bleu (396 nm).

Modèle: Spectres doublés simulés à partir des spectres fondamentaux mesurés au foyer (Fig. 2.30), les formules de Sellmeier pour modéliser la dispersion additionnelle dans le second trajet du faisceau, la phase introduite par le compresseur à prismes évaluée à partir du modèle présenté au premier chapitre et une phase supplémentaire correspondant à la dispersion des optiques ajustée de façon à centrer les pics d'excitation à 396 et 419 nm.

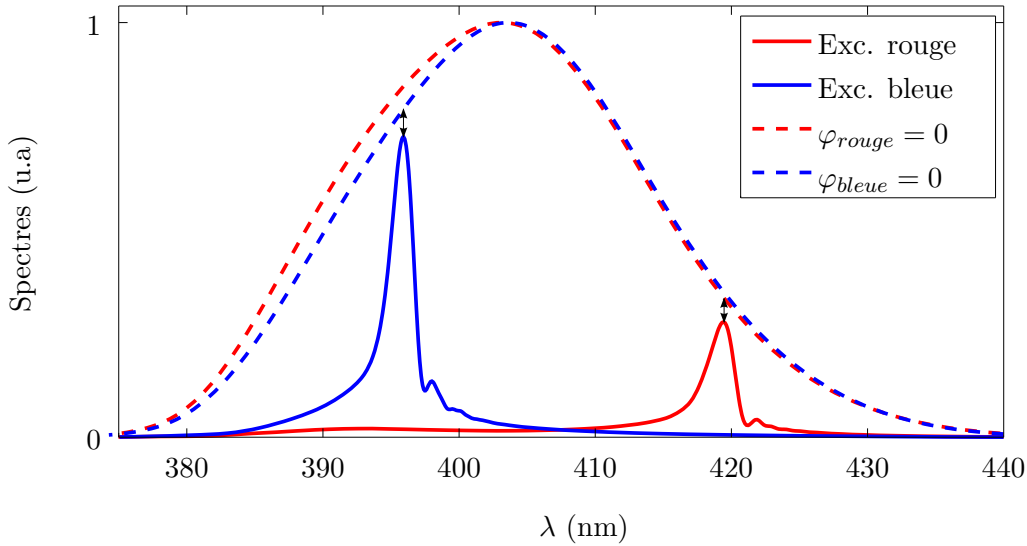


Figure 2.32: Spectres doublés simulés pour les phases estimées correspondant aux deux formes d'excitation et pour des phases spectrales nulles, à partir des spectres fondamentaux mesurés au foyer (Fig. 2.30).



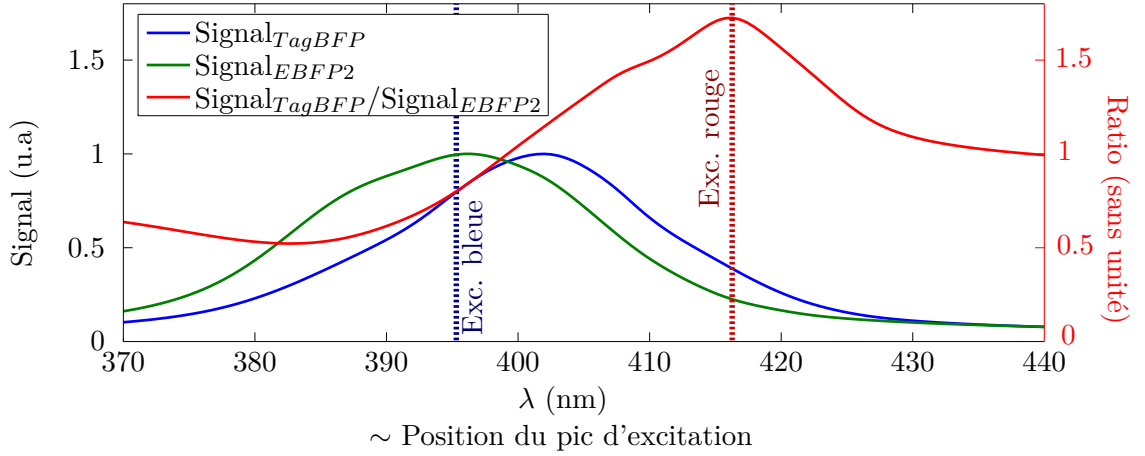


Figure 2.33: Niveaux de signaux de fluorescence de EBFP2.0 et TagBFP simulés pour une phase spectrale centrée à différentes longueurs d'onde (en abscisse) avec les paramètres  $\varphi''' \sim -25000 \text{ fs}^3$  et  $\varphi^{(4)} \sim -60000 \text{ fs}^4$ . Les spectres à deux photons ont été simulés avec les spectres d'excitation (laser) mesurés au foyer (Fig. 2.30) et les spectres d'absorption représentés Fig. 2.29.

avec différents fluorophores, ce qui permet de les identifier assez simplement. La Fig. 2.34 montre les images obtenues avec les spectres d'excitation centrés à 396 nm et 419 nm (Fig. 2.31) et avec les bandes de détection dans le bleu 420-495 nm et dans le rouge 500-600 nm (Fig. 2.29). Les images Fig. 2.34(a), (b), (c) et (d) sont représentées avec la même dynamique de niveau de gris. Nous faisons l'acquisition de ces images en régime de comptage de photons. Cela signifie que pour éviter toute saturation du comptage on ajuste l'intensité du faisceau de façon à avoir en moyenne moins d'un photon détecté toutes les cinq impulsions laser; ce critère a été atteint pour une intensité de  $\sim 6 \text{ mW}$  dans chacun des bras. Notons qu'il est très important d'être en régime linéaire de comptage pour ne pas faire apparaître un contraste factice qui ne rendrait compte que de la disparité des niveaux de signaux entre les différents fluorophores. Nous avons été particulièrement attentif à cet effet car l'un des fluorophores (EBFP2.0) de notre échantillon est beaucoup plus exprimé que les autres et par endroit son signal de fluorescence est dix fois plus intense que les autres. Cette hétérogénéité des niveaux de fluorescence a nécessité une grande dynamique dans les images (détection de grands et petits signaux). C'est la raison pour laquelle les images présentées ici ont nécessité un temps d'acquisition total de 38 secondes (avec une fréquence pixel de 100 kHz et moyennées 16 fois). En régime de comptage de photon sans saturation, le nombre de photons maximal s'écrit:

$N_{max} = N_{moy}F_{rep}/5/f_{pixel}$ , où  $F_{rep}$  est le taux de répétition du laser,  $f_{pixel}$  la fréquence pixel et  $N_{moy}$  le nombre d'images moyennées. On obtient pour les images de cette expérience  $N_{max} = 2400$ , soit une dynamique de l'ordre de 240 pour les petits signaux. L'image 2.34(e) est une image composite formée à partir des images (a) (canal rouge), (c) (canal vert) et (d) (canal bleu). On peut clairement distinguer trois couleurs: orange, cyan et vert correspondant aux trois fluorophores, respectivement Teal, EBFP2.0 et TagBFP. Nous avons évalué la diaphonie entre les différents canaux comme représentant entre 10 à 20% du signal mesuré. Cette diaphonie est essentiellement causée par les temps de vie de fluorescence de quelques nanosecondes des fluorophores et réduit de façon significative le contraste. On peut évaluer l'efficacité de la méthode en évaluant le facteur de contraste:

$$\Gamma = \frac{R_{bleu} - R_{rouge}}{R_{bleu} + R_{rouge}} \quad (2.33)$$

où  $R_{bleu}$  et  $R_{rouge}$  sont les ratios d'émission entre les cellules exprimant EBFP2.0 et TagBFP pour des impulsions correspondant respectivement à une excitation bleue et rouge (à canal de détection fixée) ou bien pour des canaux de détection respectivement bleu et rouge (à excitation fixée). Ce critère permet d'évaluer le gain obtenu avec notre approche. Commençons par évaluer le contraste dans le cas d'une excitation donnée, bleue par exemple de façon à exciter les trois fluorophores; on obtient  $\Gamma_{initial} = 0.15$ . Dans le cas où on utilise les deux formes d'impulsions alternativement pour éviter la diaphonie (en bloquant un train d'impulsions puis l'autre) les images du canal de détection bleu donne un contraste  $\Gamma_{detectionBleue} = 0.3$ , soit un facteur 2 d'amélioration par rapport au contraste par un seul filtrage spectral à la détection. En faisant l'acquisition simultanée des différentes images, le contraste devient  $\Gamma_{detectionBleue} = 0.23$  soit un gain de plus de 50%. La diaphonie entre les images est donc à l'origine d'une perte de 50% sur le gain de contraste offert par la sélectivité à l'excitation. Néanmoins, ce contraste amélioré est suffisant pour faire des combinaisons linéaires entre les différentes images (Fig. 2.29(a), (c) et (d) afin d'extraire les différentes composantes de fluorescence (Fig. 2.35).

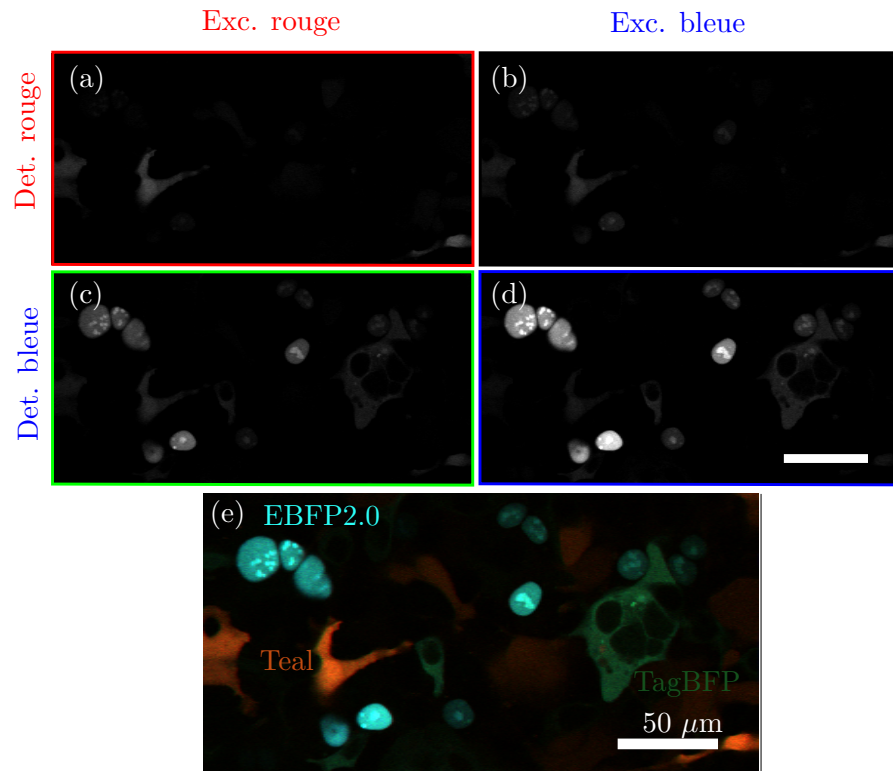


Figure 2.34: Images de cellules HEK transfectées avec EBFP2.0, TagBFP et Teal correspondant aux canaux de détection rouge (500-600 nm) et bleue (430-495 nm) et aux formes d'excitation décalées vers le rouge (419 nm) et vers le bleu (396 nm) (Fig. 2.31).

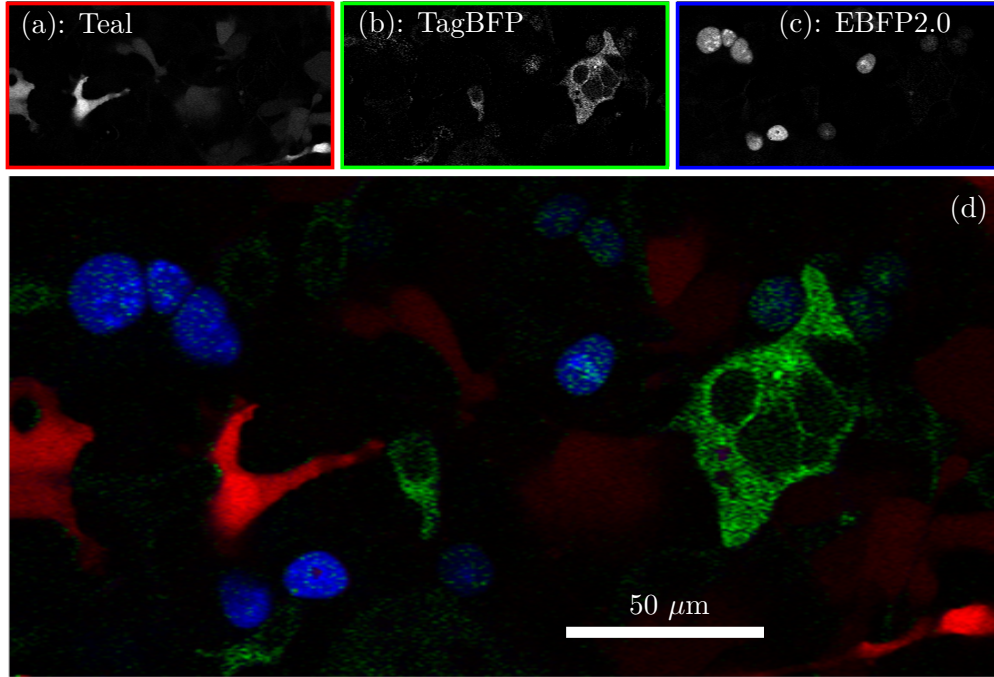


Figure 2.35: Combinaison linéaire des images (a), (c) et (d) de la Fig. 2.34 pour mettre en exergue les fluorophores Teal (a), TagBFP (b) et EBFP2.0 (c). (d) est une image composite des images (a), (b), et (c).

### 2.7.6 Conclusion sur l'expérience et perspectives

Cette expérience montre que notre schéma de façonnage combiné au multiplexage temporel permet d'imager simultanément trois fluorophores avec une source laser commerciale produisant des impulsions de spectre 100 nm à mi-hauteur. Les disparités importantes de niveaux de signaux des fluorophores de l'échantillon ont imposé des temps d'acquisition longs (38 s par image) ce qui n'est pas une limite de la méthode en elle-même mais plutôt de la microscopie 2PEF en régime de comptage de photons. Les temps de vie de fluorescence sont à l'origine d'une diaphonie importante entre les différents canaux de détection, ce qui réduit le gain de contraste offert par la sélectivité à l'excitation. On peut envisager deux types de solutions pour réduire cet effet: soit l'utilisation d'un laser dont le taux de répétition est plus faible, ou bien utiliser un miroir galvanométrique pour envoyer alternativement le faisceau dans un bras avec un matériau dispersif puis dans un autre bras sans. Il est remarquable de pouvoir distinguer trois fluorophores proches (bleus) avec un bon contraste et en une mesure. Combinée avec un spectre encore plus large, cette expérience laisse entrevoir la possibilité d'imager encore

plus de fluorophores simultanément.

## 2.8 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons tout d'abord décrit un nouveau schéma de façonnage qui permet la commutation rapide entre des formes d'impulsions arbitraires combiné avec un SLM 2D adressé optiquement, dont les masques diffractifs permettent le façonnage à la fois en phase et en amplitude. Nous avons utilisé ce façonneur à commutation rapide pour réaliser une expérience de microscopie sélective dans un embryon en cours de développement avec des temps d'acquisition et une résolution standards pour un microscope à deux photons. Cette expérience a permis de valider l'utilisation d'une phase du troisième ordre pour contrôler l'excitation de plusieurs fluorophores et a ouvert la voie à une implémentation beaucoup plus simple. En effet, nous avons montré qu'un compresseur à prismes, combiné avec des morceaux de verre permet de produire des phases spectrales du troisième ordre tout à fait adaptées pour l'imagerie sélective et compatibles avec un schéma de multiplexage temporel des impulsions qui permet une fréquence de commutation de 150 MHz entre les impulsions excitatrices. Enfin, nous avons utilisé ce schéma simple et efficace pour imager simultanément trois fluorophores spectralement proches. Pour cela nous avons combiné l'excitation sélective avec l'approche plus classique du filtrage spectral de la fluorescence émise par l'échantillon. Avec un laser à forte cadence ( $2 \times 75$  MHz) le contraste est modéré par le phénomène de diaphonie: des photons de fluorescence émis tardivement sont attribués au mauvais canal d'excitation. Pour éviter cet effet, il faudrait donc utiliser un laser avec un taux de répétition moindre. Enfin, l'utilisation d'impulsions de spectre plus large permettra d'imager simultanément un plus grand nombre de fluorophores.



# 3 Mesures optimales

## Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>81</b>
<b>2.2</b>	<b>La microscopie de fluorescence excitée à deux photons</b>	<b>82</b>
2.2.1	L'absorption à deux photons	82
2.2.2	Intérêt pour la microscopie	82
<b>2.3</b>	<b>Excitation sélective et microscopie 2PEF</b>	<b>84</b>
2.3.1	Intérêt pour l'imagerie biologique	84
2.3.2	Le signal de fluorescence	84
2.3.3	Contrôler l'absorption à deux photons	86
2.3.4	Forme d'impulsion optimale	94
2.3.5	Conclusion	95
<b>2.4</b>	<b>Les méthodes de mesure au foyer d'un objectif</b>	<b>95</b>
2.4.1	Choix des techniques de caractérisation	97
2.4.2	Mesure de la durée des impulsions	98
2.4.3	Balayer la dérive de fréquence	102
2.4.4	FROG interférométrique	105
2.4.5	Mesure du spectre à deux photons	109
2.4.6	Conclusion	113
<b>2.5</b>	<b>Microscopie d'un échantillon biologique dynamique avec des impulsions façonnées</b>	<b>114</b>
2.5.1	Microscopie 2PEF avec impulsions façonnées: état de l'art	114

2.5.2	Façonnage d'impulsions et commutation rapide . . . . .	115
2.5.3	Résultats et discussions . . . . .	118
2.5.4	Conclusion sur l'expérience . . . . .	124
<b>2.6</b>	<b>Façonnage d'impulsions avec des prismes pour la micro-</b> <b>scopie à deux photons multiplexée . . . . .</b>	<b>127</b>
2.6.1	Façonner avec des éléments dispersifs . . . . .	127
2.6.2	Multiplexage temporel des impulsions . . . . .	129
2.6.3	Spectres à deux photons . . . . .	130
2.6.4	Microscopie à deux photons sélective d'un embryon en développe- ment . . . . .	131
<b>2.7</b>	<b>Microscopie à deux photon multiplexée de trois fluorophores</b>	<b>133</b>
2.7.1	Imager plus de fluorophores . . . . .	134
2.7.2	Multiplexage temporel . . . . .	134
2.7.3	Choix des bandes spectrales de détection . . . . .	135
2.7.4	Formes des spectres à deux photons . . . . .	136
2.7.5	Microscopie d'un échantillon biologique avec trois fluorophores	139
2.7.6	Conclusion sur l'expérience et perspectives . . . . .	144
<b>2.8</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>145</b>

---

Nous allons maintenant aborder une tout autre application du façonnage d'impulsions: la mesure optimale d'un paramètre contenu dans la dépendance temporelle d'un champ électromagnétique. Cette approche originale a été développée par le groupe d'Optique Quantique Multimode du Laboratoire Kastler Brossel (LKB) à l'Ecole Normale Supérieure (ENS). Dans le cadre d'un projet intitulé Qualitime, porté par Nicolas Treps au LKB et soutenu par l'Agence Nationale de la Recherche, notre travail au LOB a consisté à développer une stratégie de façonnage adaptée à cette problématique ainsi qu'à la mettre en œuvre expérimentalement. Les aspects théoriques décrits en début de chapitre sont inspirés du manuscrit de thèse d'Olivier Pinel [25].

### 3.1 Problématique

L'enjeu des expériences que nous allons décrire dans ce chapitre est de transmettre à distance les fluctuations  $\delta p$  d'un paramètre  $p$  par l'intermédiaire d'un champ électrique



porté par un faisceau lumineux. Nous nous intéressons au cas où l'intensité de ce champ ne dépend pas du paramètre, ce cas ayant déjà été étudié par le passé [181–183]. Nous noterons par la suite  $\mathcal{E}(p)$  le champ électrique complexe dépendant du paramètre  $p$ , qui dépend implicitement des variables habituelles de temps, ou de fréquence optique et d'espace. Nous ne cherchons pas à optimiser la dépendance du champ électrique avec le paramètre  $p$ , mais nous nous intéressons exclusivement à la mesure de ses fluctuations. Par conséquent, nous laissons à l'expérimentateur le soin de perfectionner la dépendance du champ électrique avec le paramètre et nous la considérons comme une donnée du problème. En d'autres termes, nous disposons d'un champ électrique  $\mathcal{E}(p)$  et nous souhaitons mesurer les fluctuations de  $p$  avec une sensibilité maximale. Nous allons tout d'abord étudier la cas purement classique, c'est-à-dire où le champ électrique ne subit aucune fluctuation d'origine quantique, puis nous nous intéresserons à la limite quantique standard, en négligeant toute autre origine de bruit.

## 3.2 Approche classique

### 3.2.1 Mesurer les fluctuations d'un paramètre du champ électrique

Dans cette partie, nous considérons des champs électriques scalaires, fonctions des variables d'espace et du temps (ou de sa variable conjuguée la fréquence optique). Nous supposons les fluctuations du paramètre d'intérêt suffisamment faibles pour pouvoir décrire son effet sur le champ électrique par un développement au premier ordre:

$$\mathcal{E}(p) = \mathcal{E}(p_0 + \delta p) \simeq \mathcal{E}(p_0) + \delta p \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0} \quad (3.1)$$

Cette approche met en évidence le rôle singulier joué par la dérivée du champ électrique par rapport au paramètre: elle porte en effet toute l'information sur les fluctuations de  $p$  et nous allons tenter d'extraire cette information en opérant une projection Hermitienne du champ électrique sur cette fonction. Nous supposons par la suite que l'on sait façonner un champ de la forme  $\left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0}$ , à partir du champ  $\mathcal{E}(p_0)$ .

### 3.2.2 La détection homodyne

Nous allons voir qu'une détection homodyne (Fig. 3.1) est un outil qui répond remarquablement à cette problématique. Une lame semi-réfléchissante permet de recombiner deux champs électriques: le signal  $\mathcal{E}_{signal} = \mathcal{E}(p)$  et l'oscillateur local plus intense  $\mathcal{E}_{ol} = \alpha \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0} \exp(i\varphi_{ol})$  où  $\varphi_{ol}$  est la phase ajustable par l'expérimentateur de l'oscillateur local par rapport au signal et  $\alpha = \frac{\|\mathcal{E}_{ol}\|}{\left\| \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0} \right\|}$  un nombre réel qui traduit que l'oscillateur local est d'intensité ajustable. Des photodiodes mesurent l'intensité des champs électriques après la lame et sont intégratrices, à la fois spatialement (sur les dimensions transverses) et temporellement. On mesure donc deux photocourants  $S_1$  et  $S_2$  tels que:

$$S_1 = \int \frac{|\mathcal{E}_{signal}(\vec{r}, t)|^2 + |\mathcal{E}_{ol}(\vec{r}, t)|^2}{2} + \text{Re}(\mathcal{E}_{signal}(\vec{r}, t)^* \mathcal{E}_{ol}(\vec{r}, t)) d\vec{r} dt \quad (3.2)$$

$$S_2 = \int \frac{|\mathcal{E}_{signal}(\vec{r}, t)|^2 + |\mathcal{E}_{ol}(\vec{r}, t)|^2}{2} - \text{Re}(\mathcal{E}_{signal}(\vec{r}, t)^* \mathcal{E}_{ol}(\vec{r}, t)) d\vec{r} dt \quad (3.3)$$

Avec une électronique adaptée, on peut mesurer la différence des photocourants D:

$$D = S_1 - S_2 = 2\text{Re} \left( \int \mathcal{E}_{signal}(\vec{r}, t)^* \mathcal{E}_{ol}(\vec{r}, t) d\vec{r} dt \right) \quad (3.4)$$

Dans notre cas, cela donne:

$$D = 2\alpha \text{Re} \left( \int \mathcal{E}(p)^* \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0} \exp(i\varphi_{ol}) d\vec{r} dt \right) \quad (3.5)$$

On reprend les notations habituelles du produit scalaire:

$$\langle f | g \rangle = \int f^*(\vec{r}, t) g(\vec{r}, t) d\vec{r} dt \quad (3.6)$$

où  $f$  et  $g$  sont deux fonctions de l'espace et du temps. Avec ces notations, l'expression de la différence de courant s'écrit:

$$D = 2\alpha \text{Re} \left\{ \exp(i\varphi_{ol}) \left\langle \mathcal{E}(p) \left| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0} \right\rangle \right\} \quad (3.7)$$

puis en remplaçant par le développement de  $\mathcal{E}(p)$ :

$$D = 2\alpha \text{Re} \left\{ \exp(i\varphi_{ol}) \left( \left\langle \mathcal{E}(p_0) \left| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0} \right\rangle + \delta p \left\| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0}^2 \right) \right\} \quad (3.8)$$

Intéressons nous au terme  $\left\langle \mathcal{E}(p_0) \left| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0} \right\rangle$  de l'éq. 3.8 qui empêche une mesure directement proportionnelle au paramètre  $\delta p$ . Nous allons montrer qu'il a la particularité d'être toujours imaginaire pur. En effet, si on fait l'hypothèse que l'intensité du champ électrique ne dépend pas du paramètre  $p$  alors:

$$\frac{\partial \|\mathcal{E}\|^2}{\partial p} \Big|_{p_0} = \frac{\partial \langle \mathcal{E} | \mathcal{E} \rangle}{\partial p} \Big|_{p_0} = \left\langle \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \Big|_{p_0} \middle| \mathcal{E}(p_0) \right\rangle + \left\langle \mathcal{E}(p_0) \left| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0} \right\rangle = 0 \quad (3.9)$$

$$\left\langle \mathcal{E}(p_0) \left| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0} \right\rangle = - \left\langle \mathcal{E}(p_0) \left| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0} \right\rangle^* \quad (3.10)$$

Cette dernière équation permet de conclure que le terme  $\left\langle \mathcal{E}(p_0) \left| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0} \right\rangle$  peut toujours s'écrire sous la forme  $i\lambda$  avec  $\lambda$  réel et par conséquent, la différence des photocourants  $D$  peut s'écrire:

$$D = 2\alpha \text{Re} \left\{ \exp(i\varphi_{ol}) \left( i\lambda + \delta p \left\| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0}^2 \right) \right\} = -4\alpha\lambda \sin(\varphi_{ol}) + 2\alpha\delta p \left\| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0}^2 \cos(\varphi_{ol}) \quad (3.11)$$

On voit qu'en ajustant  $\varphi_{ol}$  à zéro, on peut directement mesurer un signal proportionnel à  $\delta p$  [24, 25]:

$$D = 2\alpha\delta p \left\| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \Big|_{p_0} \right\|^2 = 2\delta p \|\mathcal{E}_{ol}\| \left\| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \Big|_{p_0} \right\| = 2\delta p \|\mathcal{E}_{ol}\| \|\mathcal{E}\| \left\| \frac{\partial u}{\partial p} \Big|_{p_0} \right\| \quad (3.12)$$

où  $u(p) = \frac{\mathcal{E}(p)}{\|\mathcal{E}(p)\|}$ . Cette approche purement classique montre qu'à condition de faire les hypothèses suivantes:

- les variations du paramètre  $p$  sont faibles;
- l'intensité du champ ne dépend pas du paramètre;
- on sait produire le champ  $\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \Big|_{p_0}$  que nous appellerons par la suite mode de mesure;

alors, une détection homodyne se révèle être une technique tout à fait adaptée pour mesurer un signal directement proportionnel aux variations d'un paramètre du champ électrique. Nous allons maintenant nous intéresser aux performances en terme de bruit de cette technique, plus précisément, nous allons déterminer quelle est la plus petite valeur de fluctuation du paramètre mesurable. Pour cela, nous supposons que le bruit de notre mesure a pour seule origine la nature quantique du champ électrique  $\mathcal{E}(p)$ .

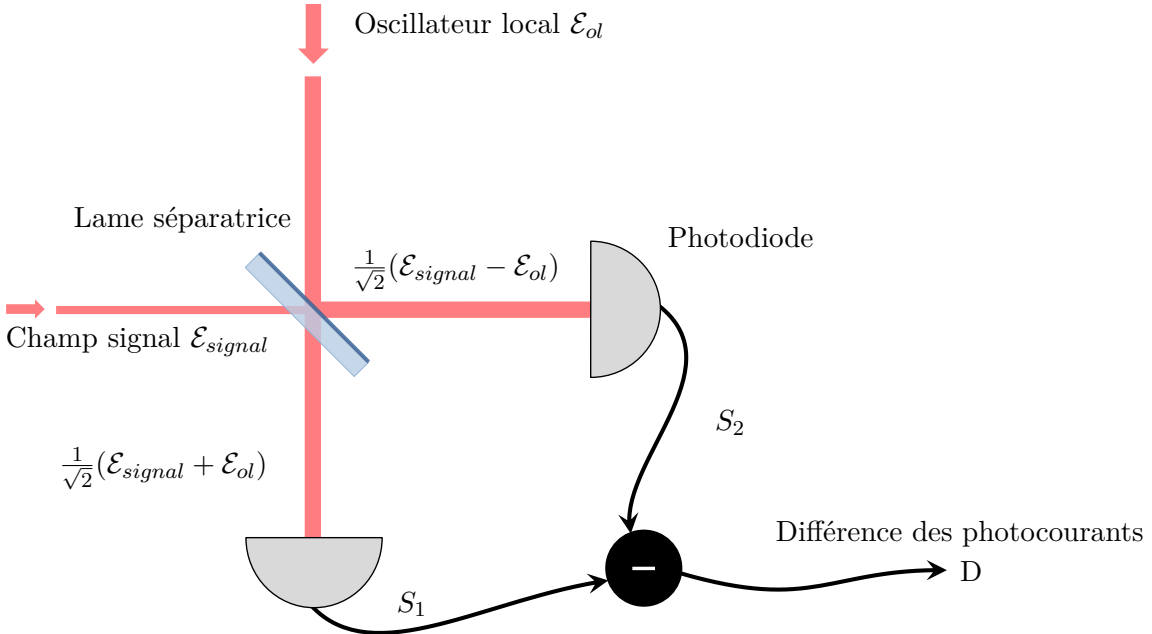


Figure 3.1: Schéma d'une détection homodyne.

### 3.3 Une mesure optimale

Nous souhaitons réaliser la mesure des variations d'un paramètre du champ électrique avec la meilleure précision possible. S'il est possible de s'affranchir du bruit classique en mettant en œuvre une stratégie de détection adaptée, on ne peut pas totalement éliminer les fluctuations quantiques du champ qui sont intimement liées à la nature même de ce champ. Pour caractériser et minimiser son influence sur la mesure, il faut donc nécessairement faire appel à l'optique quantique.

#### 3.3.1 La borne de Cramér-Rao

Le groupe d'Optique Quantique Multimode du LKB a démontré qu'on pouvait appliquer un résultat bien connu du calcul stochastique, la borne de Cramér-Rao [184], à l'estimation d'un paramètre du champ électromagnétique [24, 25]. Ils ont déterminé une borne ultime sur la sensibilité de toute mesure non biaisée des variations d'un paramètre du champ électromagnétique, indépendante de la méthode de mesure employée. A condition de vérifier les hypothèses suivantes:

- on considère un état du champ cohérent ou comprimé;
- les fluctuations du champ sont petites devant sa valeur moyenne (en particulier  $\frac{\partial \|\mathcal{E}\|^2}{\partial p} = 0$ );

alors la plus petite variation du paramètre détectable s'écrit:

$$\delta p_{min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \left\| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \Big|_{p_0} \right\|} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \left\| \frac{\partial u}{\partial p} \Big|_{p_0} \right\|} \quad (3.13)$$

où  $u(p) = \frac{\mathcal{E}(p)}{\|\mathcal{E}(p)\|}$ . On retrouve la dépendance bien connue avec  $\sqrt{N}$ , où  $N$  est le nombre de photons moyens du champ  $\mathcal{E}(p)$  [185, 186]. Le terme  $\sigma_1$  est le facteur de compression de la quadrature  $\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \Big|_{p_0}$  (il vaut 1 dans le cas d'un état cohérent non comprimé). Il traduit le fait qu'il est possible de produire un état sous-poissonien pour lequel le bruit est comprimé, c'est-à-dire inférieur à celui d'une source laser standard de même puissance [187, 188]. Il est donc optimal de ne comprimer que les fluctuations de la quadrature  $\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \Big|_{p_0}$  pour améliorer la borne de Cramér-Rao. Notons que ce résultat n'est *a priori*

valable que pour des spectres suffisamment étroits ( $< 10$  nm de largeur à mi-hauteur) [25]. Néanmoins, le groupe d'Optique Quantique Multimode du LKB a récemment montré dans un article en cours de parution que ce résultat pouvait s'étendre aux spectres larges mais il prend alors une forme un peu plus complexe. Nous l'utiliserons cependant sous cette forme car cela permet une description relativement simple tout en donnant des résultats exacts.

#### 3.3.2 La détection homodyne: une mesure optimale

En adoptant une description quantique du champ signal de la détection homodyne, l'oscillateur local étant supposé suffisamment intense pour négliger ses fluctuations, on peut démontrer que le schéma de détection homodyne atteint la borne de Cramér-Rao [24, 25]. En d'autres termes, il n'existe pas de schéma expérimental offrant une meilleure sensibilité aux variations de  $p$  si on considère les seules fluctuations quantiques du champ signal comme source de bruit. Ce résultat n'a rien d'étonnant, en effet, le mode  $\left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0}$  contient toute l'information sur les fluctuations du paramètre et la projection sur la bonne quadrature de ce mode permet de rejeter toute source de bruit non pertinente. De plus, il est possible d'étendre ce résultat à deux paramètres (ou plus) à condition que les modes de mesure relatifs à chacun des paramètres soient orthogonaux entre eux. En effet, dans ce cas, la détection homodyne permet une mesure indépendante des fluctuations des paramètres avec une sensibilité optimale.

#### 3.3.3 Interprétation

L'expression de la borne de Cramér-Rao  $\delta p_{min}$  révèle plusieurs approches possibles pour améliorer la limite de sensibilité [25]:

- maximiser le nombre de photons  $N$  dans le mode de champ moyen  $\mathcal{E}(p)$  en jouant sur l'intensité du champ ou sur le temps d'intégration du détecteur ( $p$  doit néanmoins rester constant pendant ce temps);
- comprimer autant que possible les fluctuations de la quadrature de mesure du champ signal;
- optimiser la dépendance du champ avec  $p$  pour maximiser le terme:  $\left\| \left. \frac{\partial u}{\partial p} \right|_{p_0} \right\|$

Nous ferons désormais l'hypothèse que ces optimisations ont été effectuées, et que l'on peut donc considérer, le champ  $\mathcal{E}(p)$  comme fixé. Il reste à déterminer quelles mesures peuvent être envisagées et comment implémenter le façonnage des modes de mesure  $\frac{\partial u}{\partial p}$  correspondant.

## 3.4 Quelles mesures envisager ?

Le groupe d'Optique Quantique Multimode du LKB a déjà étudié le problème des mesures optimales dans le domaine spatial [189]. Le but des expériences que nous allons décrire est d'appliquer les mêmes concepts dans le domaine temporel. Nous souhaitons donc mesurer les fluctuations d'un paramètre qui se traduiront par des variations temporelles du champ, sans pour autant modifier son intensité, c'est-à-dire l'intégrale du spectre. On se restreint à l'optique linéaire qui ne permet pas d'échange d'énergie entre les composantes spectrales du spectre. Dans ce cas, cela revient à considérer les paramètres dont les fluctuations ne modifient pas le spectre mais uniquement la phase spectrale. Il est de plus nécessaire de moduler ce paramètre à quelques MHz de façon à s'affranchir des différents bruits techniques (dérive du laser, vibrations etc.).

### 3.4.1 Une mesure optimale de distance dans le vide

Nous allons commencer par nous intéresser à un paramètre très simple: le décalage temporel du champ:  $\mathcal{E}(\tau) = \mathcal{E}_0(t - \tau)$  après propagation dans le vide [24, 25].

#### Schéma expérimental

Considérons deux points de l'espace A et B dans le vide, séparés d'une distance L (Fig. 3.2): A dispose d'un laser impulsionnel synchronisé sur une horloge et B reçoit le rayonnement émis par le laser de A. B souhaite détecter toute fluctuation de l'instant d'arrivée des impulsions en implémentant le schéma de détection homodyne décrit auparavant. Pour cela, B dispose lui aussi d'un laser impulsionnel rigoureusement identique à celui de A, dont il peut façonner la forme des impulsions. Au début de l'expérience, le retard est rigoureusement nul entre les deux lasers qui pénètrent dans la détection homodyne ( $\tau_0 = 0$ ) et les fluctuations de retard s'identifient au retard lui-même  $\tau = \delta\tau$ . Pour effectuer une mesure optimale de fluctuations du retard, B choisit le mode de détection  $\left. \frac{\partial \mathcal{E}(\tau)}{\partial \tau} \right|_0 = \left. \frac{\partial \mathcal{E}_0(t-\tau)}{\partial \tau} \right|_0 = -\frac{\partial \mathcal{E}_0}{\partial t}$  ou dans le domaine spectral:  $\left. \frac{\partial \mathcal{E}(\tau)}{\partial \tau} \right|_0 = i\omega \mathcal{E}_0(\omega)$

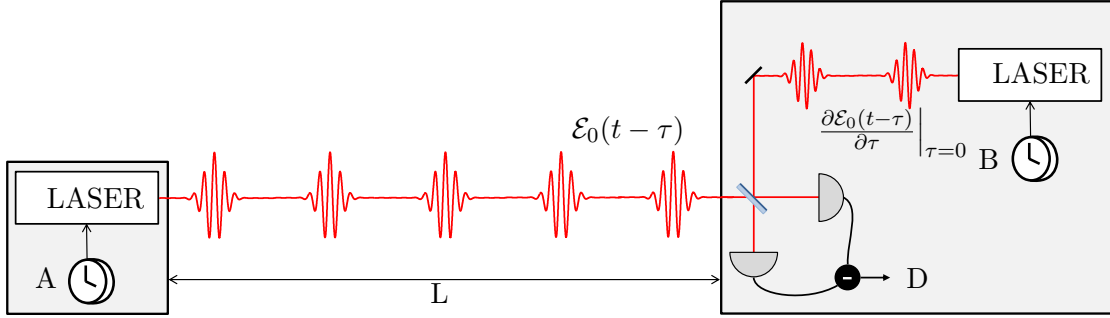


Figure 3.2: Schéma de détection optimale pour la mesure des fluctuations de retard dans le vide (adapté de [24]).

### Origine des fluctuations du retard

Les fluctuations du retard dans le vide peuvent avoir une triple origine: la distance  $L$  varie, les horloges dérivent l'une par rapport à l'autre ou encore le chemin optique a été modifié par le passage d'une onde gravitationnelle [27]. Pour découpler ces trois origines possibles, on considère tout d'abord le cas sans onde gravitationnelle:

- la distance  $L$  entre A et B est parfaitement fixée: toute fluctuation du retard peut alors s'interpréter comme une dérive des horloges;
- A et B sont tous deux synchronisés sur une même horloge ultra-précise: les fluctuations du retard peuvent alors s'interpréter comme des variations de la distance  $L$  entre A et B.

En l'absence d'onde gravitationnelle, ce schéma peut donc permettre, au choix, de synchroniser deux horloges à distance ou bien de mesurer des fluctuations de distances avec une très grande précision. En revanche, pour pouvoir détecter une onde gravitationnelle, il faudra à la fois parfaitement synchroniser les horloges et stabiliser la distance  $L$  afin d'identifier avec certitude l'origine des fluctuations. Nous prenons l'exemple de la détection d'ondes gravitationnelles car il s'agit typiquement d'une application où on cherche à mesurer les fluctuations d'un paramètre  $p$  si faible [27] qu'il est intéressant de le faire de façon optimale.



### Borne de Cramer-Rao pour une mesure optimale de retard

On peut évaluer la borne de Cramér-Rao pour une mesure de retard, en reprenant l'expression 3.13:

$$\tau_{min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \frac{\|\frac{\partial \mathcal{E}_0}{\partial \tau}\|}{\|\mathcal{E}_0(t)\|}} \quad (3.14)$$

D'après le théorème de Parseval-Plancherel:

$$\frac{\|\frac{\partial \mathcal{E}_0}{\partial \tau}\|}{\|\mathcal{E}_0(t)\|} = \frac{\|i\omega \mathcal{E}_0(\omega)\|}{\|\mathcal{E}_0(\omega)\|} = \sqrt{\frac{\int \omega^2 |\mathcal{E}_0(\omega)|^2 d\omega}{\int |\mathcal{E}_0(\omega)|^2 d\omega}} = \sqrt{\langle \omega^2 \rangle} \quad (3.15)$$

Finalement, le plus petit retard mesurable s'écrit [24,25]:

$$\tau_{min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \sqrt{\langle \omega^2 \rangle}} \quad (3.16)$$

La sensibilité de la mesure est donc limitée par la moyenne quadratique de la pulsation optique  $\sqrt{\langle \omega^2 \rangle}$  qui peut s'écrire sous la forme:  $\sqrt{\langle \omega^2 \rangle} = \sqrt{\langle ((\omega - \omega_0) + \omega_0)^2 \rangle} = \sqrt{\Delta\omega^2 + \omega_0^2}$  où  $\omega_0$  est la pulsation centrale du spectre et  $\Delta\omega$  l'écart quadratique moyen. Par conséquent, il sera judicieux d'utiliser une source large bande, de fréquence centrale maximale.

### Mesure optimale versus sous-optimale

Une mesure sous-optimale pourrait consister à n'exploiter que la fréquence porteuse ou bien que l'enveloppe. Étudions ces deux cas pour évaluer le gain obtenu en implémentant une mesure optimale de retard dans le vide. Notons  $\tau_g$  et  $\tau_\varphi$  les retards relatifs à l'enveloppe des impulsions et à leur porteuse. On s'intéresse à une mesure dans le vide et par conséquent  $\tau_g = \tau_\varphi$ . On appelle  $a(t)$  l'enveloppe complexe du champ. Le champ électrique peut se décomposer sous la forme:  $\mathcal{E}(\tau_g, \tau_\varphi) = a(t - \tau_g) \exp(-i\omega_0(t - \tau_\varphi))$  ou dans le domaine spectral:  $\mathcal{E}(\tau_g, \tau_\varphi) = \mathcal{E}_0(\omega) \exp(i(\omega - \omega_0)\tau_g) \exp(i\omega_0\tau_\varphi)$ . Le développement au premier ordre du champ électrique s'écrit:

$$\mathcal{E}(\tau_\varphi, \tau_g) = \mathcal{E}(0, 0) + \tau_\varphi \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \tau_\varphi} \right|_{0,0} + \tau_g \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \tau_g} \right|_{0,0} \quad (3.17)$$

Explicitons les deux modes de mesure:

$$\left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \tau_\varphi} \right|_{0,0} = i\omega_0 \mathcal{E}_0(\omega) \quad \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \tau_g} \right|_{0,0} = i(\omega - \omega_0) \mathcal{E}_0(\omega) \quad (3.18)$$

On pourra mesurer indépendamment les deux paramètres à condition que leurs modes de mesure respectifs soient orthogonaux. Vérifions que c'est bien le cas en évaluant leur produit scalaire:

$$\begin{aligned} \left\langle \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \tau_\varphi} \right|_{0,0} \left| \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \tau_g} \right|_{0,0} \right\rangle &= \langle i\omega_0 \mathcal{E}_0(\omega) | i(\omega - \omega_0) \mathcal{E}_0(\omega) \rangle = \int \omega_0(\omega - \omega_0) |\mathcal{E}_0(\omega)|^2 d\vec{r} \frac{d\omega}{2\pi} \\ &= (\omega_0^2 - \omega_0^2) \|\mathcal{E}_0\|^2 = 0 \end{aligned} \quad (3.19)$$

Afin d'évaluer la borne de Cramér-Rao de ces deux paramètres, on utilise le théorème de Parseval-Plancherel pour calculer les normes de leur mode de mesure:

$$\frac{\left\| \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \tau_\varphi} \right|_{0,0} \right\|}{\|\mathcal{E}_0(t)\|} = \frac{\|i\omega_0 \mathcal{E}_0(\omega)\|}{\|\mathcal{E}_0(\omega)\|} = \omega_0 \quad \frac{\left\| \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \tau_g} \right|_{0,0} \right\|}{\|\mathcal{E}(t)\|} = \frac{\|i(\omega - \omega_0) \mathcal{E}_0(\omega)\|}{\|\mathcal{E}_0(\omega)\|} = \Delta\omega \quad (3.20)$$

On en déduit les bornes de Cramér-Rao pour  $\tau_g$  et  $\tau_\varphi$  [24, 25]:

$$\tau_{\varphi, \min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \omega_0} \quad \tau_{g, \min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \Delta\omega} \quad (3.21)$$

Ce résultat est relativement intuitif: une mesure exploitant la phase accumulée par la porteuse a une sensibilité limitée par  $\omega_0$  tandis qu'une mesure exploitant le décalage de l'enveloppe seulement est limitée par  $\Delta\omega$ . En effet, dans le premier cas, l'échelle de temps caractéristique est la période optique  $2\pi/\omega_0$ . Dans le second cas, l'échelle de temps caractéristique est la durée de l'impulsion, de l'ordre de  $2\pi/\Delta\omega$ . En comparant les éq. 3.16 et 3.21 il apparaît qu'une mesure optimale de retard ne présentera un véritable gain par rapport à une mesure n'exploitant que la porteuse qu'à condition d'avoir une largeur spectrale du même ordre que la fréquence centrale. Dans le cas d'un laser femtoseconde commercial typique (profil gaussien,  $\lambda_0 = 800$  nm, 100 nm à mi-hauteur)<sup>1</sup>:

---

<sup>1</sup>On a :  $\omega_0/\sqrt{\langle \omega^2 \rangle} = \omega_0/\sqrt{\omega_0^2 + \Delta\omega^2}$ . Or un spectre gaussien de largeur à mi-hauteur en longueur d'onde  $FWHM_\lambda$  et de longueur d'onde centrale  $\lambda_0$  a une variance en pulsation optique  $\Delta\omega \sim 2\pi c FWHM_\lambda / \lambda_0^2 / \sqrt{8 \ln 2}$ .

$$\frac{\tau_{min}}{\tau_{\varphi,min}} = \frac{\omega_0}{\sqrt{\langle \omega^2 \rangle}} \approx 0.999 \quad (3.22)$$

le gain est plutôt faible et il sera nécessaire d'utiliser une source encore plus large bande pour véritablement tirer parti de l'avantage d'une mesure optimale (par génération de supercontinuum par exemple).

#### Laser large bande versus laser monochromatique

Intéressons nous au cas d'un laser monochromatique à  $\omega_1$ , c'est-à-dire  $\Delta\omega \ll \omega_1$ . Dans ce cas, le mode de mesure s'écrit simplement:  $\left. \frac{\partial \mathcal{E}(\tau)}{\partial \tau} \right|_0 = i\omega_1 \mathcal{E}(\tau)$  et la sensibilité ultime de la mesure s'écrit:

$$\tau_{min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N}\omega_1} \quad (3.23)$$

Il apparaît qu'une mesure avec un laser impulsif ( $\lambda_0 = 800$  nm, 100 nm à mi-hauteur), même optimal, peut facilement être égalée en utilisant un laser monochromatique de longueur d'onde centrale  $\lambda_1 = \frac{2\pi c}{\sqrt{\langle \omega^2 \rangle}} \approx 799$  nm. Toutefois, une source femtoseconde présente l'avantage que la mesure de retard n'est pas limitée à l'intérieur d'un intervalle égal à la période optique. En effet, sa dynamique maximale est limitée par la période de répétition du laser qui est typiquement de l'ordre de 13 ns. L'avantage d'un laser femtoseconde est donc la dynamique des retards qu'il permet de mesurer (de la fraction de fs à la dizaine de ns soit plus de 80 dB) [26] mais aussi la possibilité de faire des mesures de dispersion comme nous allons le voir par la suite.

#### 3.4.2 Plusieurs mesures optimales indépendantes dans un milieu dispersif

Nous allons maintenant nous intéresser à l'effet d'un milieu dispersif parfaitement transparent sur le champ électrique.

#### Paramètres physiques et paramètres naturels

Reprenons la même description que précédemment mais supposons dorénavant que le faisceau émis par A traverse un milieu dispersif d'épaisseur L. Dans ce cas, le champ

mesuré par B s'écrit dans le domaine spectral:

$$\mathcal{E}(\omega) = \mathcal{E}_0(\omega)e^{i\phi} \quad (3.24)$$

$\phi$  correspond à la phase spectrale accumulée dans le milieu. On modélise la dispersion du milieu par un développement au premier ordre du nombre d'onde  $k$ :

$$\phi \approx k(\omega_0)L + \left. \frac{\partial k}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)L = n_\varphi(\omega_0)\frac{\omega_0}{c}L + n_g(\omega_0)\frac{(\omega - \omega_0)}{c}L = \omega_0\tau_\varphi + \tau_g(\omega - \omega_0) \quad (3.25)$$

avec  $n_\varphi$  l'indice de réfraction du milieu,  $n_g(\omega_0) = n_\varphi(\omega_0) + \omega_0 \left. \frac{\partial n_\varphi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0}$  l'indice de groupe,  $\tau_\varphi = n_\varphi(\omega_0)L/c$  le retard de phase et  $\tau_g = n_g(\omega_0)L/c$  le retard de groupe. Il apparaît dans cet exemple qu'il faut bien distinguer des paramètres qui sont indépendants ( $L$ ,  $n_\varphi(\omega_0)$ ,  $\left. \frac{\partial n_\varphi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0}$ ) de paramètres naturels du problème qui apparaissent spontanément dans l'expression du champ ( $\tau_\varphi$  et  $\tau_g$ ) et qui peuvent être fortement couplés (tout en ayant des modes de mesure orthogonaux). Dans le contexte d'un milieu dispersif,  $\tau_\varphi = \tau_{\varphi 0} + \delta\tau_\varphi$  et  $\tau_g = \tau_{g 0} + \delta\tau_g$  où  $\tau_{\varphi 0}$  et  $\tau_{g 0}$  sont les retards de phase et de groupe introduits par le milieu dispersif. Les modes de mesure décrits auparavant pour  $\tau_g$  et  $\tau_\varphi$  dans le vide sont donc légèrement modifiés. On note  $\phi_0(\omega)$  la phase accumulée dans le matériau correspondant à  $\tau_{\varphi 0}$  et  $\tau_{g 0}$ . On en déduit:

$$\left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \tau_\varphi} \right|_{\tau_{\varphi 0}, \tau_{g 0}} = i\omega_0 e^{i\phi_0(\omega)} \mathcal{E}_0(\omega) \quad \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \tau_g} \right|_{\tau_{\varphi 0}, \tau_{g 0}} = i(\omega - \omega_0) e^{i\phi_0(\omega)} \mathcal{E}_0(\omega) \quad (3.26)$$

#### Les paramètres pertinents

On souhaite déterminer les paramètres pertinents de l'expérience, qui peuvent s'exprimer simplement en fonction des paramètres naturels. Le paramètre  $p = \tau_g - \tau_\varphi = \left. \frac{\partial n_\varphi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} \omega_0 L/c$  est un paramètre intéressant, directement proportionnel à la dispersion du milieu, en supposant  $L$  parfaitement constant. On peut construire le paramètre  $q$  de façon à ce que son mode de mesure soit orthogonal à celui de  $p$  et qu'il s'écrive comme combinaison linéaire des paramètres naturels  $\tau_\varphi$  et  $\tau_g$ . On trouve  $q = \frac{\omega_0^2 \tau_\varphi + \Delta \omega^2 \tau_g}{\langle \omega^2 \rangle}$  [25]. Les modes de

### 3.4. Quelles mesures envisager ?

mesure correspondant à ces deux paramètres s'écrivent alors:

$$\left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p,q} = i\mathcal{E}(\omega) \frac{\omega_0^2}{\langle \omega^2 \rangle} \left( \omega - \omega_0 \left( 1 + \frac{\Delta \omega^2}{\omega_0^2} \right) \right) \quad \left. \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial q} \right|_{p,q} = i\omega \mathcal{E}(\omega) \quad (3.27)$$

A  $L$  fixé,  $q$  rend compte des fluctuations de chemin optique liées à des variations à la fois de l'indice de phase et de l'indice de groupe. Par conséquent, le schéma de détection homodyne permet une mesure des variations de dispersion, indépendante des fluctuations de chemin optique.

#### Borne de Cramér-Rao pour une mesure de dispersion et de chemin optique

On peut estimer les bornes de Cramér-Rao pour les fluctuations de dispersion et de chemin optique [25]:

$$\delta p_{min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N}} \frac{\sqrt{\langle \omega^2 \rangle}}{\omega_0 \Delta \omega} \quad \delta q_{min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \sqrt{\langle \omega^2 \rangle}} \quad (3.28)$$

#### 3.4.3 Synthèse des modes de mesure

Le tableau 3.1 récapitule les différents paramètres évoqués jusqu'ici, leurs modes de mesure dans le domaine spectral en fonction de  $\mathcal{E}_0(\omega)$  (le champ produit par le laser) et leurs bornes de Cramér-Rao.

Paramètre	Mode de mesure	Borne de Cramér-Rao
$\tau$ dans le vide	$\propto i\omega \mathcal{E}_0(\omega)$	$\tau_{min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \sqrt{\langle \omega^2 \rangle}}$
$\tau_\varphi$ dans le vide	$\propto i\mathcal{E}_0(\omega)$	$\tau_{\varphi,min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \omega_0}$
$\tau_g$ dans le vide	$\propto i(\omega - \omega_0) \mathcal{E}_0(\omega)$	$\tau_{g,min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \Delta \omega}$
$\tau_\varphi$ dans un milieu dispersif	$\propto i e^{i\phi_0(\omega)} \mathcal{E}_0(\omega)$	$\tau_{\varphi,min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \omega_0}$
$\tau_g$ dans un milieu dispersif	$\propto i(\omega - \omega_0) e^{i\phi_0(\omega)} \mathcal{E}_0(\omega)$	$\tau_{g,min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \Delta \omega}$
$p = \tau_g - \tau_\varphi$ la dispersion	$\propto i(\omega - \omega_0 (1 + \frac{\Delta \omega^2}{\omega_0^2})) e^{i\phi_0(\omega)} \mathcal{E}_0(\omega)$	$\delta p_{min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N}} \frac{\sqrt{\langle \omega^2 \rangle}}{\omega_0 \Delta \omega}$
$q = \frac{\omega_0^2 \tau_\varphi + \Delta \omega^2 \tau_g}{\langle \omega^2 \rangle}$ le chemin optique	$\propto i\omega e^{i\phi_0(\omega)} \mathcal{E}_0(\omega)$	$\delta q_{min} = \frac{1}{2\sigma_1 \sqrt{N} \sqrt{\langle \omega^2 \rangle}}$

Table 3.1: Synthèse des paramètres

#### 3.4.4 Critère de fidélité

Dans la prochaine section nous allons examiner différentes approches pour façonner les modes de mesures que nous avons sélectionnés, mais avant cela, il est nécessaire de

se doter d'un critère pour évaluer la fidélité du mode obtenu. Si l'oscillateur local de la détection homodyne ne correspond pas parfaitement au mode de mesure optimal alors la projection opérée par la détection homodyne (Eq. 3.4) ne donne plus un signal directement proportionnel aux fluctuations mais il en est une fonction affine et nous ne mesurons plus du tout le signal souhaité. Par conséquent, on évalue usuellement la qualité du mode façonné par un critère de projection noté  $\rho$ , qui correspond au module de l'intégrale de recouvrement entre le mode souhaité et le mode produit :

$$\rho = \frac{\left| \left\langle \mathcal{E}_{ol} \left| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right|_{p_0} \right\rangle \right|}{\|\mathcal{E}_{ol}\| \left\| \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \right\|_{p_0}} \quad (3.29)$$

$\rho$  peut prendre des valeurs comprises entre 0 et 1. Il atteint 1 lorsque le mode est optimal.

En conclusion, nous avons présenté une méthode qui permet d'extraire les fluctuations d'un paramètre  $p$  contenu dans la dépendance spatiale ou temporelle d'un champ électrique  $\mathcal{E}(p)$  d'intensité moyenne constante et ce, avec une sensibilité maximale dans le cas où l'on est seulement limité par les fluctuations quantiques du champ. Cette méthode repose sur un schéma de détection homodyne ainsi que sur la production d'un champ de la forme  $\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial p} \Big|_{p_0}$ . Nous nous sommes particulièrement intéressés aux paramètres contenus dans la dépendance temporelle du champ: une mesure de retard dans le vide, de dispersion et de chemin optique. Pour implémenter une mesure optimale de l'un de ces paramètres on a besoin d'un façonneur d'impulsions dont la fonction de transfert spectrale est de la forme  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$  (Tableau 3.1).

### 3.5 Comment façonner les modes de mesure ?

Nous avons déterminé différents paramètres d'intérêt, ainsi que la forme des différents modes de mesure s'y rapportant. Pour produire ces modes de mesure, nous disposons *a priori* d'un laser identique à celui qui a produit le champ signal (il peut d'ailleurs s'agir du même laser) et il est donc nécessaire de créer deux types de fonction de transfert. Tout d'abord, dans le cas des mesures après un milieu dispersif, il faut introduire une phase spectrale  $\phi_0(\omega)$  équivalente à celle du champ signal, ce qui peut être obtenu en

introduisant une même épaisseur de milieu dispersif dans le faisceau de l'oscillateur local. Ensuite, il faut être capable de façonner des fonctions de transfert de la forme  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$ . Il y a deux stratégies pour y parvenir. La première consiste à utiliser un façonneur d'impulsions programmable, capable de fournir une large gamme de fonctions de transfert. Nous avons par exemple montré à la section 1.4.4 la génération de la dérivée de l'enveloppe d'une gaussienne, qui serait la forme d'oscillateur local adaptée pour mesurer le retard de groupe. La seconde stratégie consiste à employer astucieusement des optiques passives dont l'éventail des fonctions de transfert est certes beaucoup plus restreint mais permet néanmoins de produire les formes d'impulsions adaptées à cette problématique.

#### 3.5.1 Pourquoi nous n'allons pas utiliser un façonneur 4f

##### Mode spatial de l'oscillateur local

Comme nous l'avons mentionné dans le premier chapitre de cette thèse, un façonneur de type 4f modifie inévitablement le mode spatial du champ électrique, or il est indispensable que l'oscillateur local soit exactement dans le même mode spatial que le champ signal. Dans le cas contraire, la mesure serait sous-optimale. On pourrait contourner ce problème en effectuant un filtrage spatial après le façonneur, mais dans la suite, nous allons plutôt nous intéresser à une méthode de façonnage qui ne souffre pas de ce type d'artefacts.

#### 3.5.2 Façonner avec des milieux biréfringents

Nous avons développé une technique de façonnage originale qui exploite la dispersion de milieux biréfringents pour produire les fonctions de transfert souhaitées.

##### Les fonctions de transfert d'un compensateur de Babinet-Soleil-Bravais

Nous allons montrer qu'une utilisation adéquate de compensateurs de Babinet-Soleil-Bravais (BSB) permet de produire les différentes fonctions de transfert évoquées précédemment. Un BSB (Fig. 3.3) est un dispositif optique qui permet d'introduire l'équivalent d'une lame d'épaisseur micrométrique ajustable d'un matériau biréfringent. Un tel dispositif est composé de trois éléments: une lame à faces parallèles et deux prismes. La première lame a une épaisseur  $L$  tandis que les deux prismes ont une épaisseur totale

réglable  $L + \delta L$ . Les deux prismes sont parfaitement alignés mais tournés de  $90^\circ$  par rapport à la première lame de façon à faire coïncider leurs axes ordinaires avec l'axe extraordinaire de la première lame. Commençons par étudier la forme du champ dans le domaine spectral après propagation dans la première lame d'axes neutres  $(\vec{o}, \vec{e})$  (repère orthonormé). On néglige la diffraction du faisceau et on ne modélise que la phase accumulée au cours de la propagation. On note  $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$  le repère orthonormé où  $\vec{z}$  est la direction de propagation du laser et  $\vec{x}$  la polarisation linéaire du laser à l'entrée du système (Fig. 3.4). L'axe ordinaire du milieu biréfringent fait un angle  $\theta$  avec la polarisation du faisceau incident.

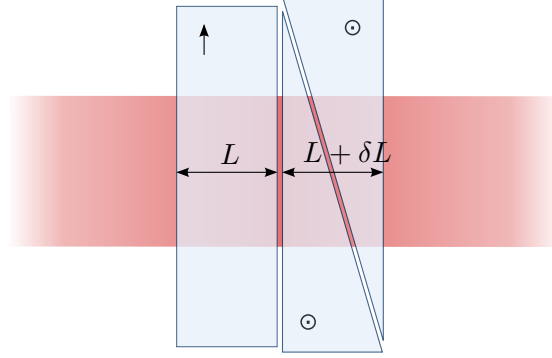


Figure 3.3: Schéma d'un compensateur de Babinet-Soleil-Bravais (BSB).

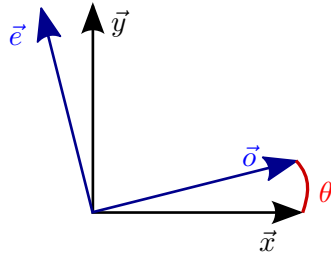


Figure 3.4:  $(\vec{o}, \vec{e})$  le repère des axes neutres du milieu et  $(\vec{x}, \vec{y})$  le repère associé au laser incident polarisé selon  $\vec{x}$

Commençons par spécifier les formules de changement de repère qui seront utiles par la suite:

$$\vec{x} = \cos(\theta)\vec{o} - \sin(\theta)\vec{e} \quad \vec{y} = \sin(\theta)\vec{o} + \cos(\theta)\vec{e} \quad (3.30)$$

$$\vec{o} = \cos(\theta)\vec{x} + \sin(\theta)\vec{y} \quad \vec{e} = -\sin(\theta)\vec{x} + \cos(\theta)\vec{y} \quad (3.31)$$



Le laser incident s'exprime dans le repère  $(\vec{o}, \vec{e})$ :

$$\vec{\mathcal{E}}_0(\omega) = \mathcal{E}_0(\omega) \vec{x} = \mathcal{E}_0(\omega) (\cos(\theta) \vec{o} - \sin(\theta) \vec{e}) \quad (3.32)$$

et après propagation sur une distance  $L$  dans le milieu biréfringent:

$$\vec{\mathcal{E}}_1(\omega) = \mathcal{E}_0(\omega) (\cos(\theta) \exp(ik_o(\omega)L) \vec{o} - \sin(\theta) \exp(ik_e(\omega)L) \vec{e}) \quad (3.33)$$

Nous allons maintenant propager le champ dans les deux prismes qui sont équivalents à une lame d'épaisseur  $L + \delta L$  mais dont les axes ordinaire et extraordinaire ont été échangés:

$$\vec{\mathcal{E}}_2(\omega) = \mathcal{E}_0(\omega) (\cos(\theta) \exp(ik_o(\omega)L + ik_e(\omega)(L + \delta L)) \vec{o} - \sin(\theta) \exp(ik_e(\omega)L + ik_o(\omega)(L + \delta L)) \vec{e}) \quad (3.34)$$

On note:

$$\phi_m(\omega) = (k_e(\omega) + k_o(\omega))(L + \frac{\delta L}{2}) \quad \delta\phi(\omega) = \frac{k_e(\omega) - k_o(\omega)}{2} \delta L \quad (3.35)$$

Ce qui donne:

$$\vec{\mathcal{E}}_2(\omega) = \mathcal{E}_0(\omega) \exp(i\phi_m(\omega)) (\cos(\theta) \exp(i\delta\phi(\omega)) \vec{o} - \sin(\theta) \exp(-i\delta\phi(\omega)) \vec{e}) \quad (3.36)$$

On remplace  $\vec{o}$  et  $\vec{e}$  avec les formules de changement de repère (Eq. 3.31):

$$\vec{\mathcal{E}}_2(\omega) = \mathcal{E}_0(\omega) \exp(i\phi_m(\omega)) \begin{pmatrix} (\cos^2(\theta) \exp(i\delta\phi(\omega)) + \sin^2(\theta) \exp(-i\delta\phi(\omega))) \vec{x} \\ + \cos(\theta) \sin(\theta) (\exp(i\delta\phi(\omega)) - \exp(-i\delta\phi(\omega))) \vec{y} \end{pmatrix} \quad (3.37)$$

$$= \mathcal{E}_0(\omega) \exp(i\phi_m(\omega)) \begin{pmatrix} (\cos^2(\theta) \exp(i\delta\phi(\omega)) + \sin^2(\theta) \exp(-i\delta\phi(\omega))) \vec{x} \\ + 2i \cos(\theta) \sin(\theta) \sin(\delta\phi(\omega)) \vec{y} \end{pmatrix} \quad (3.38)$$

Nous faisons le choix de prendre  $\theta = \frac{\pi}{4}$  car dans ce cas l'amplitude de la polarisation  $\vec{y}$

est maximale et la polarisation  $\vec{x}$  est réelle, en effet:

$$\vec{\mathcal{E}}_2(\omega) = \mathcal{E}_0(\omega) \exp(i\phi_m(\omega)) \begin{pmatrix} \cos(\delta\phi(\omega))\vec{x} \\ +i \sin(\delta\phi(\omega))\vec{y} \end{pmatrix}$$

Cette expression révèle que dans le cas d'une implémentation avec un laser unique, il est judicieux d'utiliser les polarisations  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$  comme champ signal et oscillateur local de façon à faire disparaître le terme de phase spectrale  $\phi_m(\omega)$  qu'il aurait sinon fallu compenser [25]. Selon les cas, on attribue le rôle d'oscillateur local à l'une ou à l'autre des polarisations. Par conséquent, on définit deux fonctions de transfert,  $R_1$  lorsque la polarisation  $\vec{y}$  est l'oscillateur local et  $R_2$  s'il s'agit de la polarisation  $\vec{x}$  :

$$R_1(\omega) = \frac{\mathcal{E}_{2,y}(\omega)}{\mathcal{E}_{2,x}(\omega)} = i \tan(\delta\phi(\omega)) \quad R_2(\omega) = \frac{\mathcal{E}_{2,x}(\omega)}{\mathcal{E}_{2,y}(\omega)} = -i \cot(\delta\phi(\omega)) \quad (3.39)$$

Pour disposer de plus de degrés de liberté, on peut empiler deux BSB dont les axes neutres sont parfaitement alignés. Dans ce cas, on a simplement:

$$\delta\phi(\omega) = \delta\phi_a(\omega) + \delta\phi_b(\omega) \quad (3.40)$$

où a et b sont deux matériaux biréfringents différents. Intéressons-nous au terme  $\delta\phi_i(\omega) = \frac{\Delta k_i(\omega)}{2} \delta L$  où  $\Delta k_i(\omega) = k_{e,i}(\omega) - k_{o,i}(\omega)$  et  $i \in \{a, b\}$ . Pour des spectres pas trop larges, on peut développer  $\Delta k_i(\omega)$  au premier ordre:  $\Delta k_i(\omega) \simeq \Delta k_i(\omega_0) + (\omega - \omega_0) \left. \frac{\partial \Delta k_i}{\partial \omega} \right|_{\omega_0}$  et  $\delta\phi_i(\omega)$  prend la forme:

$$\delta\phi_i(\omega) = \Delta k_i(\omega_0) \frac{\delta L}{2} + (\omega - \omega_0) \left. \frac{\partial \Delta k_i}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} \frac{\delta L}{2}$$

Ici aussi, on peut faire apparaître les indices de groupe et de phase des deux matériaux:

$$\delta\phi(\omega) = \delta\phi_a(\omega) + \delta\phi_b(\omega) \quad (3.41)$$

$$= \underbrace{\frac{\Delta n_{g,a} \delta L_a + \Delta n_{g,b} \delta L_b}{2c}}_{\gamma} (\omega - \omega_0) + \underbrace{\frac{\omega_0}{2c} (\Delta n_{\varphi,a} \delta L_a + \Delta n_{\varphi,b} \delta L_b)}_{\eta = m \frac{\pi}{2} + \varepsilon} \quad (3.42)$$

Il est approprié d'écrire le terme  $\eta$  sous la forme  $m\frac{\pi}{2} + \varepsilon$  (avec  $m$  entier et  $|\varepsilon| < \frac{\pi}{2}$ ) car selon la valeur de  $m$  il est pertinent de réaliser un développement au premier ordre de la fonction de transfert  $R_1$  ou  $R_2$ . En effet  $R_1$  est une fonction tangente et  $R_2$  une fonction cotangente de la variable  $\delta\phi(\omega)$ . Ces deux fonctions de transfert sont donc toutes les deux  $\pi$ -périodiques mais avec des domaines de pseudo-linéarité disjointes comme on peut le voir sur la Fig. 3.5. Afin de bien identifier à quelle période de la fonction de transfert  $R_1$  ou  $R_2$  appartient un point de fonctionnement, on appelle "ordre  $m$ " la courbe continue avec laquelle on travaille (Fig. 3.5).

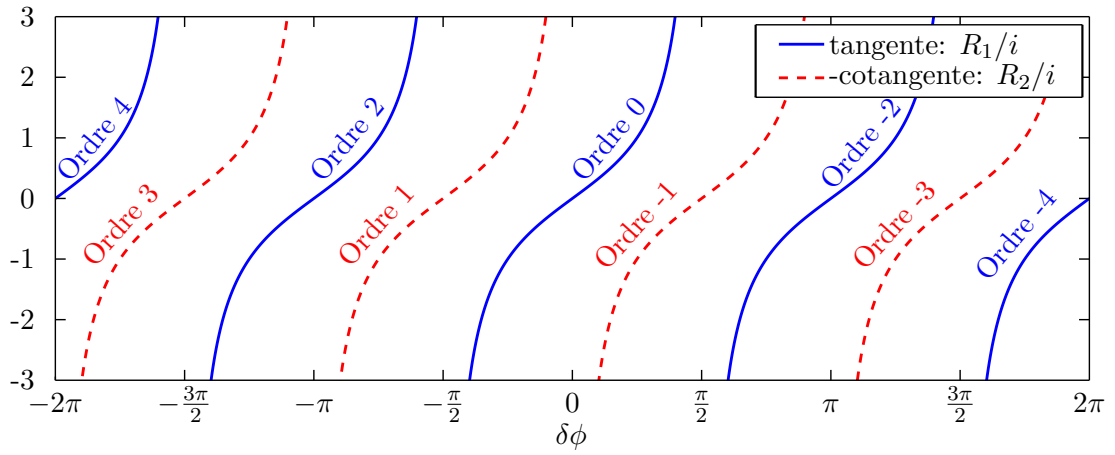


Figure 3.5: Multiples ordres d'un compensateur de Babinet-Soleil-Bravais (BSB).

#### Les ordres multiples d'un BSB

Les ordres multiples d'un BSB jouent un rôle équivalent à celui d'un BSB additionnel avec  $\Delta n_g = 0$  et avec des épaisseurs discrètes telles que  $\frac{\omega_0}{2c} \delta L_n \Delta n_\varphi = n \frac{\pi}{2}$ . Les simulations numériques seront l'occasion d'évaluer la qualité des modes obtenus avec les modes d'ordre supérieur.

#### BSB à l'ordre 0

**Un unique BSB à l'ordre 0** L'ordre 0 du dispositif implique  $\eta$  proche de 0 et correspond aux fonctions de transfert du type  $R_1$  (en tangente). On peut distinguer deux cas de figure: un dispositif ne comptant qu'un seul BSB et un dispositif en comptant deux.

Commençons par étudier le cas d'un seul BSB. Supposons  $|\delta\phi(\omega)| \ll \frac{\pi}{2}$  de façon à

pouvoir faire un développement au premier ordre de la fonction tangente:

$$R_1(\omega) = i \tan \left( \frac{\Delta n_g \delta L}{2c} (\omega - \omega_0) + \frac{\omega_0}{2c} \Delta n_\varphi \delta L \right) \simeq i \Delta n_g \frac{\omega - \omega_1}{c} \frac{\delta L}{2} \quad (3.43)$$

où  $\omega_1 = \omega_0 \frac{\Delta n_g - \Delta n_\varphi}{\Delta n_g}$ . Avec un seul BSB on ne dispose que d'un seul degré de liberté: l'épaisseur de BSB  $\delta L$ . Remarquons que ce degré de liberté ne permet pas de modifier  $\omega_1$  mais seulement l'amplitude de la fonction de transfert. Par cette approche, il faut donc choisir un matériau aux propriétés optiques adéquates de sorte à décider de la forme de la fonction de transfert souhaitée ( $R_1(\omega) \propto i\omega$  ou  $R_1(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$ ).

Dans le cas  $R_1(\omega) \propto i\omega$  (pour une mesure de retard ou de chemin optique), il est pertinent de choisir un matériau tel que  $\frac{\Delta n_g - \Delta n_\varphi}{\Delta n_g} \ll 1$ . En effet, dans ce cas,  $\omega_1 \ll \omega_0$  et la fonction de transfert s'écrit:

$$R_1(\omega) \approx i \Delta n_g \frac{\omega}{c} \frac{\delta L}{2} \propto i\omega \quad (3.44)$$

Notons que cette expression n'est valide qu'à condition que  $|\delta\phi(\omega)| \ll \frac{\pi}{2}$  ou en pratique  $|\delta L| \ll \frac{\lambda_0}{2|\Delta n_g|}$ . Dans la mesure où  $\delta L$  est un facteur d'amplitude, cela implique une amplitude de fonction de transfert faible, c'est-à-dire un oscillateur local faible devant le champ signal, soit le contraire de ce qui est souhaité. Il sera donc nécessaire d'atténuer le champ signal pour remplir les conditions d'une mesure optimale avec une détection homodyne.

En se reportant au tableau 3.6 on peut remarquer que le Quartz (cristal biréfringent usuel) peut être un matériau candidat, en effet:  $\frac{\Delta n_g - \Delta n_\varphi}{\Delta n_g} \approx 6.50 \cdot 10^{-2} \ll 1$ . Dans ces conditions, estimons le critère de fidélité  $\rho$  défini à la sous-section 3.4.4 pour le Quartz, avec un laser centré à 800 nm et de largeur spectrale 100 nm:

$$\rho_{quartz} = \frac{|\langle i(\omega - \omega_1) \mathcal{E} | i\omega \mathcal{E} \rangle|}{\|i(\omega - \omega_1) \mathcal{E}\| \|i\omega \mathcal{E}\|} = \frac{\langle \omega^2 \rangle - \omega_1 \langle \omega \rangle}{\sqrt{\langle \omega^2 \rangle - 2\omega_1 \langle \omega \rangle + \omega_1^2} \sqrt{\langle \omega^2 \rangle}} \quad (3.45)$$

$$\rho_{quartz} = \frac{\Delta\omega^2 + \omega_0^2 \left(1 - \frac{\Delta n_g - \Delta n_\varphi}{\Delta n_g}\right)}{\sqrt{\Delta\omega^2 + \omega_0^2 \left(1 - \frac{\Delta n_g - \Delta n_\varphi}{\Delta n_g}\right)^2} \sqrt{\Delta\omega^2 + \omega_0^2}} \sim 0.999993 \quad (3.46)$$

A titre de comparaison, un oscillateur local de la forme  $i\mathcal{E}(\omega)$ , que l'on peut produire simplement avec une lame demi-onde achromatique, donne un critère de fidélité (spectre gaussien,  $\lambda_0 = 800$  nm et largeur à mi-hauteur 100 nm):

$$\rho_{\frac{\pi}{2}} = \frac{\langle i\mathcal{E} | i\omega\mathcal{E} \rangle}{\|i\mathcal{E}\| \|i\omega\mathcal{E}\|} = \frac{\omega_0}{\sqrt{\langle \omega^2 \rangle}} \sim 0.9986 \quad (3.47)$$

Par ailleurs, pour produire une fonction du type  $R_1(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$  un choix de matériau fixe la valeur de  $\omega_1$  or il doit nécessairement être ajustable. On ne peut donc pas produire cette fonction de transfert avec un BSB à l'ordre 0.

On a donc déterminé un premier point de fonctionnement: un BSB de type Quartz ( $\frac{\Delta n_g - \Delta n_\varphi}{\Delta n_g} \ll 1$ ), avec une épaisseur  $|\delta L| \ll \frac{\lambda_0}{2\Delta n_g}$  peut produire une fonction de transfert de la forme  $R_1(\omega) \propto i\omega$  avec un critère de fidélité de 99.9993%.

**Deux BSB à l'ordre 0** L'approche ne comptant qu'un seul BSB se révèle insuffisante à l'ordre 0 pour façonner correctement les modes (Tableau 3.1)  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_0)$  (mesure de retard de groupe) et  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_0(1 + \frac{\Delta\omega^2}{\omega_0^2}))$  (mesure de dispersion). Pour cela on peut combiner deux BSB à l'ordre 0. En supposant  $|\delta\phi(\omega)| \ll \pi/2$ , un développement de la fonction tangente au premier ordre donne:

$$\begin{aligned} R_1(\omega) &= i \tan \left( \frac{\Delta n_{g,a}\delta L_a + \Delta n_{g,b}\delta L_b}{2c} (\omega - \omega_0) + \frac{\omega_0}{2c} (\Delta n_{\varphi,a}\delta L_a + \Delta n_{\varphi,b}\delta L_b) \right) \\ &\simeq i \frac{\Delta n_{g,a}\delta L_a + \Delta n_{g,b}\delta L_b}{2c} (\omega - \omega_1) \end{aligned} \quad (3.48)$$

où  $\omega_1 = \omega_0 \frac{(\Delta n_{g,a} - \Delta n_{\varphi,a})\delta L_a + (\Delta n_{g,b} - \Delta n_{\varphi,b})\delta L_b}{\Delta n_{g,a}\delta L_a + \Delta n_{g,b}\delta L_b}$ . Dans le cas où l'on souhaite avoir  $\omega_1 = \omega_0$ , cela revient à prendre:

$$\frac{(\Delta n_{g,a} - \Delta n_{\varphi,a})\delta L_a + (\Delta n_{g,b} - \Delta n_{\varphi,b})\delta L_b}{\Delta n_{g,a}\delta L_a + \Delta n_{g,b}\delta L_b} = 1 \quad (3.49)$$

ou plus simplement:

$$\delta L_a = -\frac{\Delta n_{\varphi,b}}{\Delta n_{\varphi,a}} \delta L_b \quad (3.50)$$

Et la condition de validité du développement devient:

$$|\delta\phi| \ll \frac{\pi}{2} \Rightarrow |\delta L_b| \ll \frac{\Delta\lambda |\Delta n_{\varphi,a}|}{2 |\Delta n_{\varphi,a} \Delta n_{g,b} - \Delta n_{\varphi,b} \Delta n_{g,a}|} \quad (3.51)$$

où  $\Delta\lambda = 2\pi c/\Delta\omega$ . On peut donc produire la fonction de transfert  $R_1(\omega) \propto i(\omega - \omega_0)$  avec deux BSB dont les épaisseurs  $\delta L_a$  et  $\delta L_b$  vérifient les éq. 3.50 et 3.51. Remarquons que l'on souhaite éviter des matériaux trop similaires car il faudrait alors de très grandes épaisseurs pour avoir une amplitude de fonction de transfert par trop faible. On choisit donc des matériaux tels que l'amplitude de la fonction de transfert n'est pas nulle:  $\Delta n_{g,a} \delta L_a + \Delta n_{g,b} \delta L_b \neq 0$ , c'est-à-dire  $\Delta n_{\varphi,a}/\Delta n_{g,a} \neq \Delta n_{\varphi,b}/\Delta n_{g,b}$ . D'après le Tableau 3.6, le Quartz et le KDP sont deux bons candidats.

Dans le cas où l'on veut  $\omega_1 = 0$ , c'est-à-dire une fonction de transfert de la forme  $R_1(\omega) \propto i\omega$ , les épaisseurs sont liées par la relation:

$$(\Delta n_{g,a} - \Delta n_{\varphi,a}) \delta L_a + (\Delta n_{g,b} - \Delta n_{\varphi,b}) \delta L_b = 0 \quad (3.52)$$

La validité du développement de la fonction tangente devient dans ce cas:

$$|\delta\phi| \ll \frac{\pi}{2} \Rightarrow |\delta L_b| \ll \frac{\lambda_0 |(\Delta n_{g,a} - \Delta n_{\varphi,a})|}{2 |\Delta n_{g,b}(\Delta n_{g,a} - \Delta n_{\varphi,a}) - \Delta n_{g,a}(\Delta n_{g,b} - \Delta n_{\varphi,b})|} \quad (3.53)$$

Notons qu'ici aussi les matériaux adéquats devront vérifier  $\Delta n_{\varphi,a}/\Delta n_{g,a} \neq \Delta n_{\varphi,b}/\Delta n_{g,b}$  pour éviter de trop grandes épaisseurs.

On peut donc retenir qu'un unique BSB tel que  $\frac{\Delta n_g - \Delta n_\varphi}{\Delta n_g} \ll 1$  à l'ordre 0 produit un mode très proche de  $R_1(\omega) \propto i\omega$  et que deux BSB tels que  $\Delta n_{\varphi,a}/\Delta n_{g,a} \neq \Delta n_{\varphi,b}/\Delta n_{g,b}$  peuvent produire à l'ordre 0 le mode  $R_1(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$ , avec  $\omega_1$  réglable. Notons que dans les deux cas, on peut régler l'amplitude de la fonction de transfert qui n'est limitée que par la validité du développement de la fonction tangente. En effet, plus l'amplitude est grande, plus on s'éloigne du domaine de linéarité de la fonction tangente.

### 3.5. Comment façonner les modes de mesure ?

Matériaux	$\Delta n_\varphi$	$\Delta n_g$	$\Delta n_\varphi/\Delta n_g$	$(\Delta n_g - \Delta n_\varphi)/\Delta n_g$
Quartz	$8.92 \cdot 10^{-3}$	$9.54 \cdot 10^{-3}$	0.93	$6.5 \cdot 10^{-2}$
MgF <sub>2</sub>	$12.0 \cdot 10^{-3}$	$13.0 \cdot 10^{-3}$	0.92	$7.8 \cdot 10^{-2}$
Calcite	$-168.9 \cdot 10^{-3}$	$-185.6 \cdot 10^{-3}$	0.91	$9.0 \cdot 10^{-2}$
KDP	$-38.2 \cdot 10^{-3}$	$-49.9 \cdot 10^{-3}$	0.77	0.23
YVO <sub>4</sub>	$213.8 \cdot 10^{-3}$	$241.8 \cdot 10^{-3}$	0.88	0.12

Figure 3.6: Valeurs de différence d'indice de groupe et de phase à 800 nm pour différents matériaux biréfringents.

#### Un BSB à l'ordre 1

Nous allons maintenant voir qu'il est aussi possible de produire un mode du type  $R_2(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$  avec un seul BSB à condition de travailler à l'ordre 1, c'est-à-dire lorsque  $\eta$  est proche de  $\frac{\pi}{2}$ . Intéressons-nous à la fonction de transfert  $R_2$  (en cotangente):

$$R_2(\omega) = -i \cot(\delta\phi) = -i \cot\left(\frac{\Delta n_g \delta L}{2c} (\omega - \omega_1)\right) \quad (3.54)$$

avec  $\omega_1 = \omega_1 = \omega_0 \frac{(\Delta n_g - \Delta n_\varphi)}{\Delta n_g}$ . Supposons  $|\delta\phi(\omega) - \frac{\pi}{2}| < \frac{\pi}{2}$ , dans ce cas, au premier ordre:

$$R_2(\omega) = -i \cot\left((\delta\phi - \frac{\pi}{2}) + \frac{\pi}{2}\right) = i \tan(\delta\phi - \frac{\pi}{2}) \quad (3.55)$$

$$R_2(\omega) \approx i \left( \frac{\Delta n_g \delta L}{2c} (\omega - \omega_1) - \frac{\pi}{2} \right) \approx i \frac{\Delta n_g \delta L}{2c} (\omega - \omega_2) \quad (3.56)$$

où  $\omega_2 = \omega_0 \frac{(\Delta n_g - \Delta n_\varphi)}{\Delta n_g} + \frac{\pi c}{\Delta n_g \delta L}$ . Il apparaît qu'avec un seul BSB, à l'ordre 1, il est possible de produire un mode du type:  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_2)$  avec  $\omega_2$  ajustable par l'expérimentateur par l'intermédiaire de  $\delta L$ . L'inconvénient est qu'on ne dispose d'aucun degré de liberté pour modifier l'amplitude de la fonction de transfert qui est fixée par le choix de  $\omega_2$ .

Ce raisonnement peut s'étendre à un ordre  $m$  quelconque du BSB en prenant:

$$\omega_2 = \omega_0 \frac{(\Delta n_g - \Delta n_\varphi)}{\Delta n_g} + m \frac{\pi c}{\Delta n_g \delta L} \quad (3.57)$$

Revenons à l'expression de la condition de validité du développement de la fonction tangente, c'est-à-dire:

$$|\delta\phi| \ll \frac{\pi}{2} \Rightarrow \left| \frac{\Delta n_g \delta L}{2c} \Delta\omega \right| \ll \frac{\pi}{2} \quad (3.58)$$

Or  $\omega_2 \sim \omega_0 \Rightarrow \delta L \sim m\lambda_0/(2\Delta n_\varphi)$ , d'où:

$$\left| \frac{\Delta n_\varphi}{\Delta n_g} \right| \gg |m| \frac{\lambda_0}{\Delta\lambda} \quad (3.59)$$

Pour un spectre gaussien,  $\lambda_0 = 800$  nm, de largeur à mi-hauteur 100 nm on a  $\Delta\lambda = 2\pi c/\Delta\omega \sim 15$   $\mu\text{m}$ , soit  $\left| \frac{\Delta n_\varphi}{\Delta n_g} \right| \gg |m|0.05$ . Le Quartz est un bon candidat avec  $\Delta n_\varphi/\Delta n_g = 0.93$  (Tableau 3.6) à condition de travailler aux ordres du BSB les plus bas.

Remarquons que la configuration que nous appelons "ordre 1" dans ce manuscrit correspond à une "lame d'onde  $\lambda_0/2$  d'ordre 0" dans la littérature.

#### Intensité minimale de l'oscillateur local

Dans tous les cas étudiés, il est nécessaire d'avoir un oscillateur local très peu intense afin que le développement au premier ordre de la fonction de transfert reste valide. Cela signifie qu'il sera nécessaire par la suite de prévoir l'atténuation du champ signal, correspondant à la polarisation orthogonale, de façon à se placer dans les conditions décrites par la théorie. Il faut par ailleurs garder à l'esprit que les meilleurs polariseurs larges bandes (Glan-Taylor, Glan-Thompson etc.) affichent des taux d'extinction de l'ordre de  $10^{-5}$  et par conséquent, on s'efforcera d'avoir un rapport inférieur à 100 entre l'intensité du champ signal et l'oscillateur local.

#### Synthèse

Voici un tableau récapitulant les caractéristiques des montages à BSB pour produire une fonction de transfert du type  $R(\omega) \propto i\omega$ .



### 3.6. Simulations numériques

Type de BSB	Expression de R	Domaine de validité
1 BSB, ordre 0 $\frac{\Delta n_g - \Delta n_\varphi}{\Delta n_g} \ll 1$	$R_1(\omega) \simeq i \frac{\Delta n_g \delta L}{2c} \omega$	$ \delta L  \ll \frac{\lambda_0}{2 \Delta n_g }$
2 BSB, ordre 0 $\frac{\Delta n_{\varphi,a}}{\Delta n_{g,a}} \neq \frac{\Delta n_{\varphi,b}}{\Delta n_{g,b}}$	$R_1(\omega) \simeq i \frac{\Delta n_{g,a} \delta L_a + \Delta n_{g,b} \delta L_b}{2c} \omega$	$ \delta L_b  \ll \frac{\lambda_0  (\Delta n_{g,a} - \Delta n_{\varphi,a}) }{2 \Delta n_{g,b}(\Delta n_{g,a} - \Delta n_{\varphi,a}) - \Delta n_{g,a}(\Delta n_{g,b} - \Delta n_{\varphi,b}) }$ et $\delta L_a = -\frac{\Delta n_{g,b} - \Delta n_{\varphi,b}}{\Delta n_{g,a} - \Delta n_{\varphi,a}} \delta L_b$

Celui-ci présente les montages pour produire  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$ .

Type de BSB	Expression de R	Domaine de validité
2 BSB, ordre 0 $\frac{\Delta n_{\varphi,a}}{\Delta n_{g,a}} \neq \frac{\Delta n_{\varphi,b}}{\Delta n_{g,b}}$	$R_1(\omega) \simeq i \frac{\Delta n_{g,a} \delta L_a + \Delta n_{g,b} \delta L_b}{2c} (\omega - \omega_1)$ où $\omega_1 = \omega_0 \frac{(\Delta n_{g,a} - \Delta n_{\varphi,a}) \delta L_a + (\Delta n_{g,b} - \Delta n_{\varphi,b}) \delta L_b}{\Delta n_{g,a} \delta L_a + \Delta n_{g,b} \delta L_b}$	$ \delta L_b  \ll \frac{\Delta \lambda  \Delta n_{\varphi,a} }{2 \Delta n_{\varphi,a} \Delta n_{g,b} - \Delta n_{\varphi,b} \Delta n_{g,a} }$ et $\delta L_a = -\frac{\Delta n_{\varphi,b}}{\Delta n_{\varphi,a}} \delta L_b$
1 BSB, ordre m $\left  \frac{\Delta n_\varphi}{\Delta n_g} \right  \gg  m  \frac{\lambda_0}{\Delta \lambda}$ où $\Delta \lambda = 2\pi c / \Delta \omega$	$R(\omega) \simeq i \frac{\Delta n_g \delta L}{2c} (\omega - \omega_2)$ où $\omega_2 = \omega_0 \frac{(\Delta n_g - \Delta n_\varphi)}{\Delta n_g} + m \frac{\pi c}{\Delta n_g \delta L}$	$ m  \ll \left  \frac{\Delta n_\varphi}{\Delta n_g} \right  \frac{\Delta \lambda}{\lambda_0}$

### 3.6 Simulations numériques

L'approche analytique développée dans la section précédente a permis de faire émerger trois configurations expérimentales distinctes:

- un BSB type Quartz ( $\frac{\Delta n_g - \Delta n_\varphi}{\Delta n_g} \ll 1$ ) à l'ordre 0 pour produire  $R_1(\omega) \propto i\omega$  avec amplitude de mode réglable;
- deux BSB type Quartz et KDP ( $\frac{\Delta n_{\varphi,a}}{\Delta n_{g,a}} \neq \frac{\Delta n_{\varphi,b}}{\Delta n_{g,b}}$ ) à l'ordre 0 pour produire  $R_1(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$  avec  $\omega_1$  et l'amplitude du mode réglables;
- un BSB type Quartz ( $\left| \frac{\Delta n_\varphi}{\Delta n_g} \right| \gg \frac{\lambda_0}{\Delta \lambda}$ ) à l'ordre 1 pour produire  $R_2(\omega) \propto i(\omega - \omega_2)$  avec  $\omega_2$  réglable et l'amplitude du mode fixée par le choix du matériau.

Cette approche s'est appuyée à la fois sur un développement au premier ordre de la fonction tangente ou cotangente ainsi que sur une modélisation de la dispersion au plus bas ordre. L'objectif de cette partie consiste d'une part à valider les points de fonctionnement établis dans la section précédente mais aussi à en révéler d'autres, en dehors du cadre des hypothèses que nous avons formulées.

### 3.6.1 Hypothèses et paramètres

Nous nous plaçons précisément dans les conditions décrites dans la section précédente, à savoir:

- une polarisation incidente linéaire selon  $\vec{x}$ ;
- des BSB dont les axes coïncident et sont à  $45^\circ$  de  $\vec{x}$ ;
- des fonctions de transfert définies à partir des polarisations  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$  après les compensateurs:  $R_1 = \frac{\mathcal{E}_y}{\mathcal{E}_x}$  et  $R_2 = \frac{\mathcal{E}_x}{\mathcal{E}_y}$ ;
- une impulsion incidente telle que:

$$\int |\mathcal{E}(t)|^2 dt = 1 \quad (3.60)$$

et dont le spectre est de 100 nm de largeur à mi-hauteur et de phase spectrale nulle (ce qui correspond à une impulsion de 9.4 fs).

Nous simulons donc directement l'éq. 3.39 qui donne  $R_1$  et  $R_2$  en fonction des paramètres des BSB. Dans la suite, on ne représentera graphiquement que les modules des fonctions de transfert complexes dans la mesure où la phase spectrale de la fonction de transfert prend naturellement la valeur souhaitée de  $\frac{\pi}{2}$ , en supposant simplement que la polarisation du champ incidente est linéaire et à  $45^\circ$  des axes neutres du BSB. Dans ces simulations, la dépendance spectrale des indices des différents matériaux est modélisée par l'intermédiaire des formules empiriques de Sellmeier. Notons de plus que pour évaluer le critère de qualité  $\rho$  défini à la sous-section 3.4.4, il est nécessaire de recentrer les impulsions dans le domaine temporel.

### 3.6.2 Un unique compensateur de Babinet-Soleil-Bravais en Quartz

La Fig. 3.7 rend compte de l'effet d'un BSB en Quartz en termes de transfert d'énergie entre la polarisation initiale selon  $\vec{x}$  et celle orthogonale selon  $\vec{y}$ , en fonction de l'épaisseur du compensateur  $\delta L_{\text{Quartz}}$ . En cela, elle révèle les différents ordres mentionnés plus haut. On peut remarquer que plus l'ordre est élevé, c'est-à-dire plus l'épaisseur  $\delta L_{\text{Quartz}}$  est grande, plus l'effet de la dispersion est important et moins le transfert d'énergie est efficace (i.e proche de 100 %).

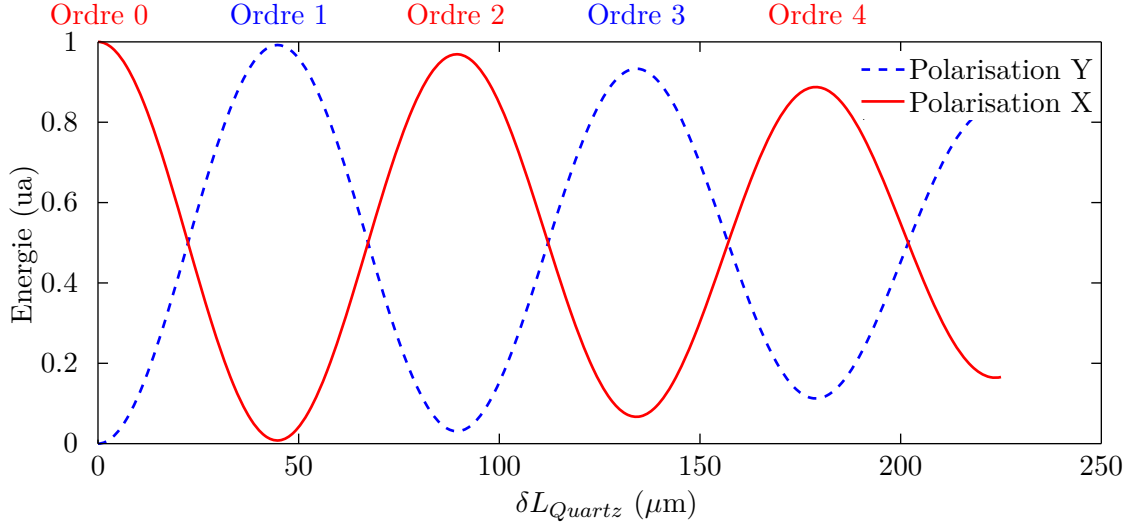


Figure 3.7: Énergie de chacune des composantes de polarisation du champ après passage dans un BSB en Quartz, avec une polarisation incidente linéaire, alignée sur  $\vec{x}$  (à  $45^\circ$  des axes du BSB) en fonction de l'épaisseur du compensateur.

#### Fonction de transfert du type $R(\omega) \propto i\omega$

Le critère de fidélité au mode visé noté  $\rho$  (défini à la sous-section 3.4.4), que nous avons déjà évalué à la section précédente, va maintenant être calculé par l'intermédiaire d'intégrales numériques et rendra précisément compte de la validité de notre démarche. Commençons par étudier le cas du mode  $R(\omega) \propto i\omega$ . La Fig. 3.8 exhibe les valeurs de ce critère de fidélité pour les modes de mesures  $\mathcal{E}_y$  et  $\mathcal{E}_x$  et les champs signaux correspondant, respectivement,  $\mathcal{E}_x$  et  $\mathcal{E}_y$ . On cherche à déterminer pour quelles valeurs d'épaisseurs du BSB, l'une des polarisation est la dérivée temporelle de l'autre. Il apparaît qu'il n'y a pas d'autre zone de fonctionnement que celle décrite auparavant: seules les faibles valeurs d'épaisseurs de BSB permettent d'atteindre un critère de fidélité proche de 100% pour la polarisation  $\mathcal{E}_y$  comme oscillateur local. La Fig. 3.9 se focalise précisément sur cette zone et indique par la même occasion l'énergie de l'oscillateur local en fonction de l'épaisseur du BSB. La première chose à noter est qu'avoir un critère de fidélité supérieur à 99.99% implique une énergie du mode inférieure à 0.1 et une épaisseur de BSB inférieure à  $10 \mu\text{m}$ . Notons qu'un BSB standard a une résolution de l'ordre de la fraction de micromètre, ce qui est donc compatible avec ces valeurs d'épaisseurs.

Prenons le cas de  $\delta L_{\text{Quartz}} = 5 \mu\text{m}$  (Fig. 3.10) pour mieux visualiser l'écart entre la fonction de transfert souhaitée et celle obtenue pour un critère de fidélité de 99.9988%.

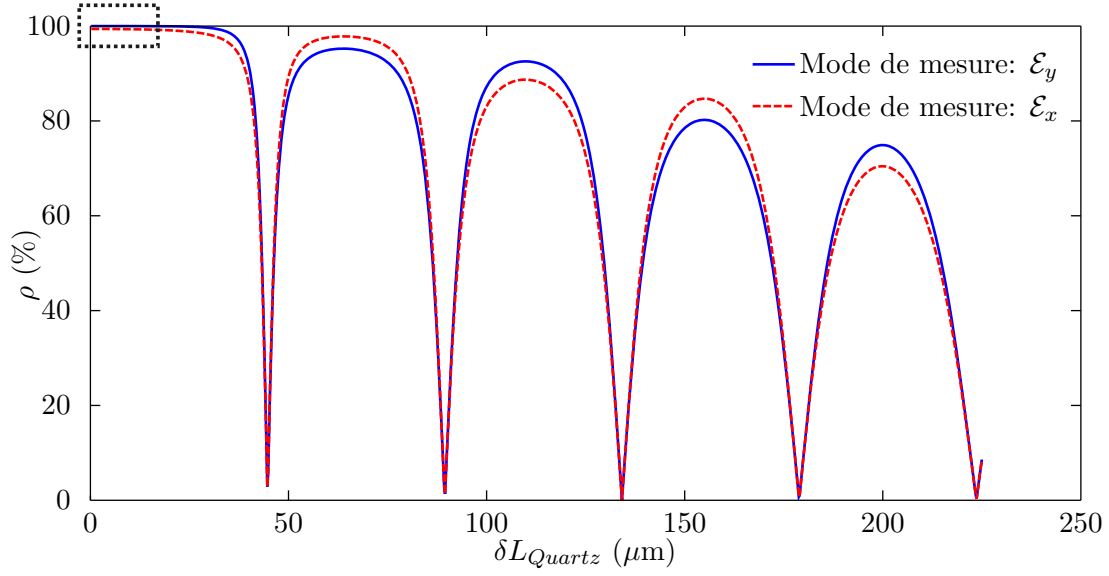


Figure 3.8: Critère de fidélité  $\rho$  pour un mode du type  $R(\omega) \propto i\omega$ , avec les polarisations  $\mathcal{E}_y$  et  $\mathcal{E}_x$  comme mode de mesure (oscillateur local) obtenues après passage dans un compensateur de BSB en Quartz en fonction de l'épaisseur du compensateur.

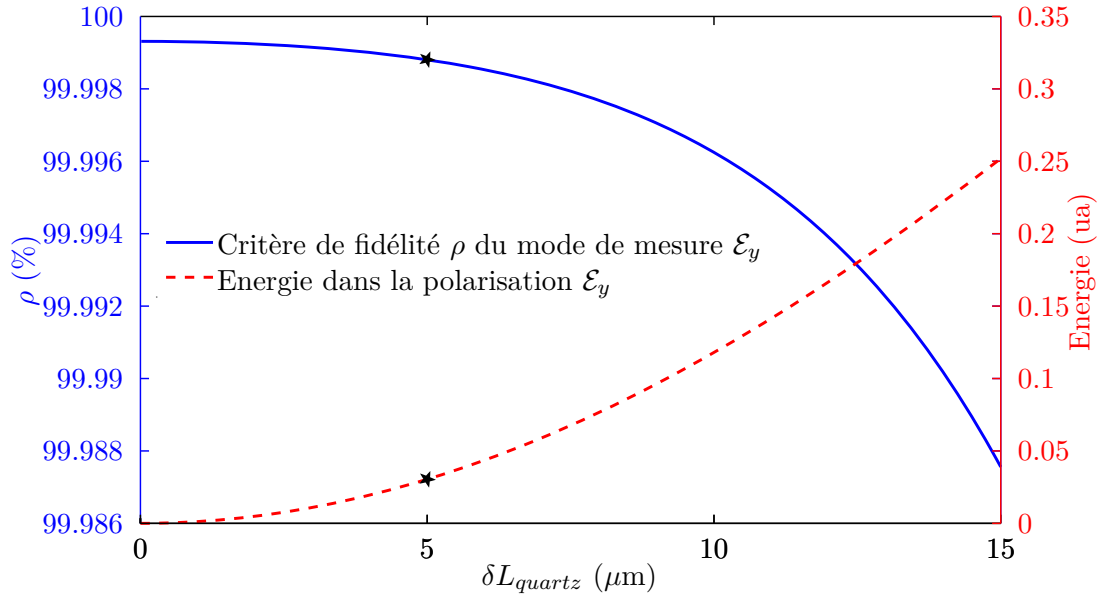


Figure 3.9: Critère de fidélité  $\rho$  pour un mode du type  $R(\omega) \propto i\omega$ , avec la polarisation  $\mathcal{E}_y$  comme mode de mesure (oscillateur local) ainsi que son énergie correspondante en fonction de l'épaisseur du compensateur.

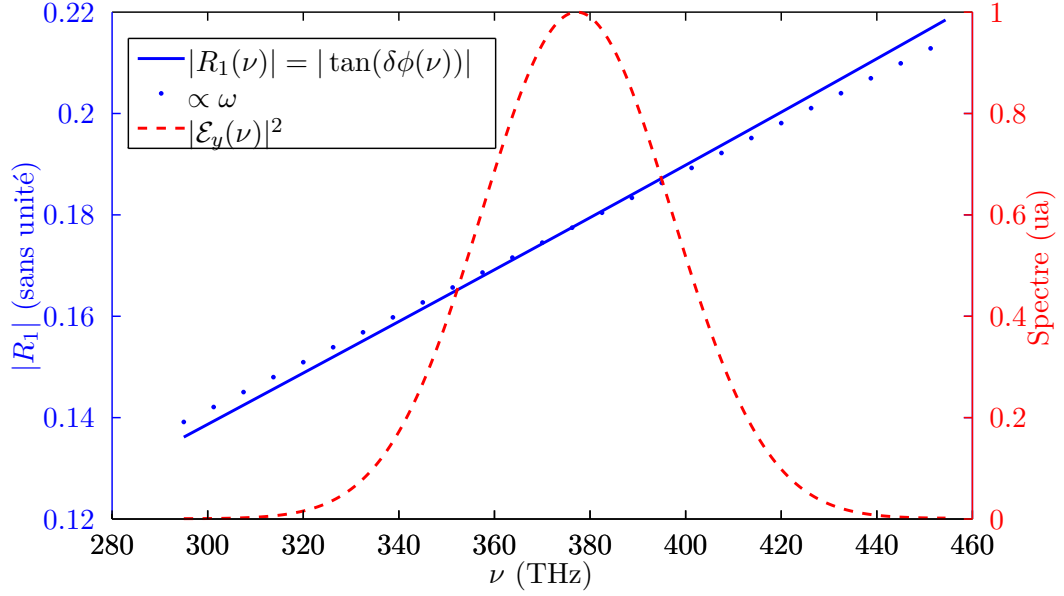


Figure 3.10: Module de la fonction de transfert complexe d'un BSB en Quartz pour  $\delta L_{\text{Quartz}} = 5 \mu\text{m}$  ( $R_1 = \frac{\mathcal{E}_y}{\mathcal{E}_x}$ ) et le spectre du mode de mesure (oscillateur local)  $\mathcal{E}_y$  en fonction de la fréquence optique ( $\rho = 99.9988$  et Energie=0.03).

Comme attendu, la fonction de transfert est affine mais ne passe pas parfaitement par zéro. Les simulations valident complètement les hypothèses de linéarisation de la partie précédente. Nous étudierons par la suite l'ajout d'un deuxième compensateur en KDP pour tenter d'améliorer le critère de fidélité.

#### Fonction de transfert du type $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_0)$

La Fig. 3.11 donne le critère de fidélité correspondant au mode du type  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_0)$  pour les fonctions de transfert en tangente et cotangente d'un BSB en Quartz. Comme attendu, les points de fonctionnement valables, c'est-à-dire avec un critère de fidélité proche de 100%, correspondent aux différents ordres du BSB. Remarquons que l'ordre 1 est bien le meilleur point de fonctionnement en terme de critère de fidélité avec  $\rho = 99.99\%$  mais il a une énergie de seulement 0.008. Dans la mesure où on souhaite un oscillateur local d'intensité pas trop faible, il peut être intéressant de se placer à un ordre supérieur. En effet, en travaillant à l'ordre 4 ( $\delta L_{\text{Quartz}} = 179 \mu\text{m}$ ), il est possible d'atteindre un critère de fidélité de près de 99% avec une énergie de plus de 0.1. Les ordres supérieurs fournissent donc un degré de liberté supplémentaire qu'il peut être utile d'exploiter. Il reste cependant nécessaire d'arbitrer entre un critère de fidélité maximal

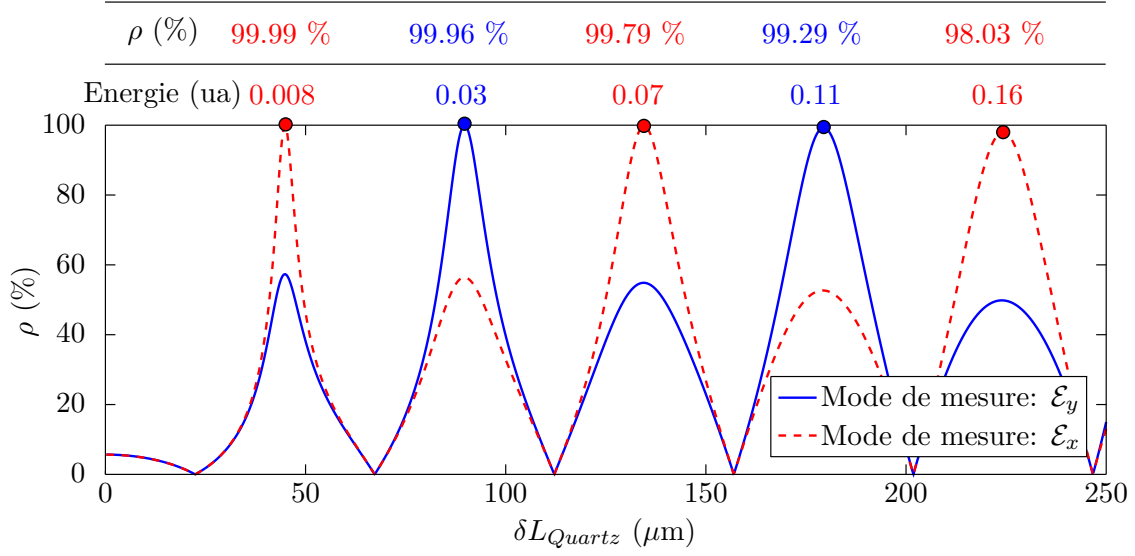


Figure 3.11: Critère de fidélité pour un mode du type  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_0)$ , avec les polarisations  $\mathcal{E}_y$  et  $\mathcal{E}_x$  comme modes de mesure obtenues après passage dans un BSB en Quartz en fonction de l'épaisseur du compensateur.

et une énergie du mode maximale. La Fig. 3.12 permet de visualiser l'écart entre la fonction de transfert voulue et la fonction de transfert réelle.

### 3.6.3 Deux BSB: l'un en Quartz et l'autre en KDP

L'ajout d'un deuxième BSB en KDP aux propriétés complémentaires de celui en Quartz fournit un degré de liberté supplémentaire pour le façonnage. Nous allons étudier l'avantage de cette approche par rapport à une configuration ne comptant qu'un seul compensateur.

#### Fonction de transfert du type $R(\omega) \propto i\omega$

La Fig. 3.13 permet de visualiser les valeurs d'épaisseur de BSB qui donnent un critère de fidélité pour le mode  $R(\omega) \propto i\omega$  compris entre 99.9% et 99.999% ainsi que l'énergie correspondante de l'oscillateur local pour la fonction de transfert en tangente, c'est-à-dire lorsque la polarisation  $\mathcal{E}_y$  est considérée comme l'oscillateur local. Il apparaît que deux BSB à l'ordre 0 permettent d'atteindre des critères de fidélité de plus de 99.999% pour des énergies d'oscillateur local plus grandes que 0.5.

La Fig. 3.15 s'intéresse aux mêmes paramètres mais avec le champ  $\mathcal{E}_x$  pris pour oscilla-

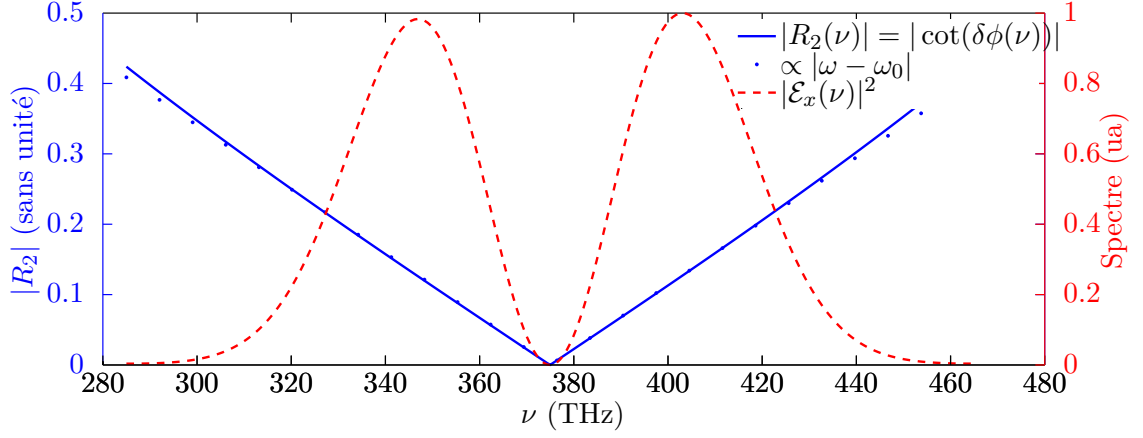


Figure 3.12: Module de la fonction de transfert complexe ( $R_2 = \frac{\mathcal{E}_x}{\mathcal{E}_y}$ ) d'un BSB en Quartz ( $\delta L_{Quartz} = 44.9 \mu\text{m}$ ) et le spectre du mode de mesure  $\mathcal{E}_x$  en fonction de la fréquence optique ( $\rho = 99.9963$  et Energie=0.008).

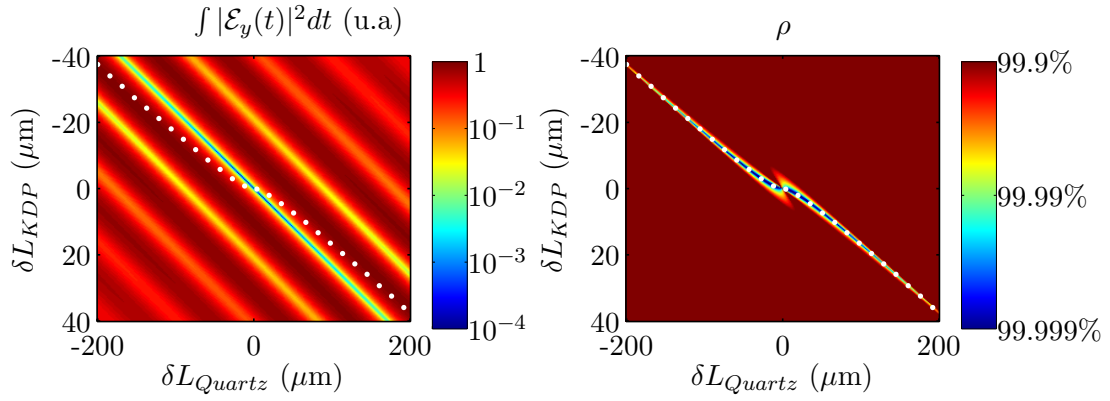


Figure 3.13: Énergie de la polarisation  $\mathcal{E}_y$  et critère de fidélité pour une fonction de transfert du type  $R(\omega) \propto i\omega$  en fonction des épaisseurs de deux BSB en Quartz et KDP pour une fonction de transfert en tangente. Les courbes à points blancs indiquent les épaisseurs correspondant aux meilleurs critères de fidélité.

teur local, c'est-à-dire pour une fonction de transfert en cotangente. On découvre qu'il existe des valeurs d'épaisseurs correspondant à l'ordre 0 des compensateurs (faible  $\delta\phi$ ) qui donnent d'excellents critères de fidélité. Cela signifie, *a priori*, que localement, la fonction cotangente est suffisamment linéaire pour donner le mode voulu et ce, avec une très grande intensité pour l'oscillateur local. Cette simulation fait donc surgir des points de fonctionnement que nous n'avions pas anticipés. Tentons d'en comprendre l'origine. Pour de faibles valeurs de  $\delta\phi$ , soit  $|\delta\phi| < \pi/2$ , la fonction de transfert (Eq. 3.39) s'écrit:

$$R_2(\omega) = -i \cot(\delta\phi) \approx -\frac{i}{\delta\phi} \quad (3.61)$$

Nous souhaitons déterminer les valeurs de  $\delta\phi$  telles que  $R_2(\omega) = R_{objectif}(\omega) \approx \frac{i}{\gamma}\omega$  où  $\gamma$  est un scalaire, ce qui implique après un développement à l'ordre 1 supposant  $\omega_0 \gg \Delta\omega$ :

$$\delta\phi_{objectif} \approx \frac{-\gamma}{\omega} \approx \gamma \left( \frac{-1}{\omega_0} + \frac{\omega - \omega_0}{\omega_0^2} \right) \quad (3.62)$$

Or on peut contrôler la forme de  $\delta\phi$  par l'intermédiaire des BSB (développement au premier ordre):

$$\delta\phi \approx \frac{\omega_0}{2c} (\Delta n_{\varphi,a} \delta L_a + \Delta n_{\varphi,b} \delta L_b) + (\omega - \omega_0) \frac{(\Delta n_{g,a} \delta L_a + \Delta n_{g,b} \delta L_b)}{2c} \quad (3.63)$$

On peut donc identifier terme à terme de façon à assurer  $\delta\phi = \delta\phi_{objectif}$ .

Terme d'ordre 0:

$$\frac{\omega_0}{2c} (\Delta n_{\varphi,a} \delta L_a + \Delta n_{\varphi,b} \delta L_b) = \frac{-\gamma}{\omega_0} \quad (3.64)$$

Terme d'ordre 1:

$$\frac{(\Delta n_{g,a} \delta L_a + \Delta n_{g,b} \delta L_b)}{2c} = \frac{\gamma}{\omega_0^2} \quad (3.65)$$



On en déduit:

$$\delta L_a = -\frac{\Delta n_{\varphi,b} + \Delta n_{g,b}}{\Delta n_{\varphi,a} + \Delta n_{g,a}} \delta L_b \quad (3.66)$$

Et dans ce cas, la fonction de transfert s'écrit:

$$R_2(\omega) \simeq i \frac{2c}{\omega_0 \delta L_b} \frac{\Delta n_{g,b}(\Delta n_{g,a} - \Delta n_{\varphi,a}) - \Delta n_{\varphi,a}(\Delta n_{g,b} - \Delta n_{\varphi,b})}{\Delta n_{g,a} + \Delta n_{\varphi,a}} \omega \quad (3.67)$$

Le domaine de validité du développement devient:

$$|\delta\phi| < \frac{\pi}{2} \Rightarrow |\delta L_b| < \frac{\lambda_0 |\Delta n_{g,a} + \Delta n_{\varphi,a}|}{2 |\Delta n_{\varphi,b}(\Delta n_{g,a} + \Delta n_{\varphi,a}) - \Delta n_{\varphi,a}(\Delta n_{g,b} + \Delta n_{\varphi,b})|} \quad (3.68)$$

Ce point de fonctionnement est particulièrement intéressant parce qu'il donne directement un oscillateur local très intense car  $\delta L_b$  est petit et est au dénominateur de la fonction de transfert. Remarquons de plus que deux matériaux similaires conviennent dès lors qu'ils ne sont pas identiques ( $a \neq b$ ) car l'épaisseur  $\delta L_b$  permettra toujours d'augmenter l'amplitude de la fonction de transfert si son numérateur est faible. Le point de fonctionnement matérialisé par une croix blanche sur la Fig. 3.15 ( $\delta L_{Quartz} = -20 \mu\text{m}$  et  $\delta L_{KDP} = -4.2 \mu\text{m}$ ) correspond à la configuration que nous venons de décrire pour des BSB en Quartz et en KDP. Il donne un critère de fidélité de  $\rho = 99.99998\%$  et une intensité de 0.993 pour l'oscillateur local. On peut visualiser la qualité de ce mode par l'intermédiaire de la Fig. 3.14 qui donne la fonction de transfert et le spectre de l'oscillateur local en fonction de la fréquence optique. Notons de plus que la courbure locale de la fonction cotangente est partiellement compensée par la différence de dispersion entre les deux matériaux, ce qui explique pourquoi le critère de fidélité est aussi bon.

Ce tableau résume les propriétés de ce point de fonctionnement.

Type de BSB	Expression de R
2 BSB, ordre 0 $a \neq b$	$R_2(\omega) \simeq i \frac{2c}{\omega_0 \delta L_b} \frac{\Delta n_{g,b}(\Delta n_{g,a} - \Delta n_{\varphi,a}) - \Delta n_{\varphi,a}(\Delta n_{g,b} - \Delta n_{\varphi,b})}{\Delta n_{g,a} + \Delta n_{\varphi,a}} \omega$

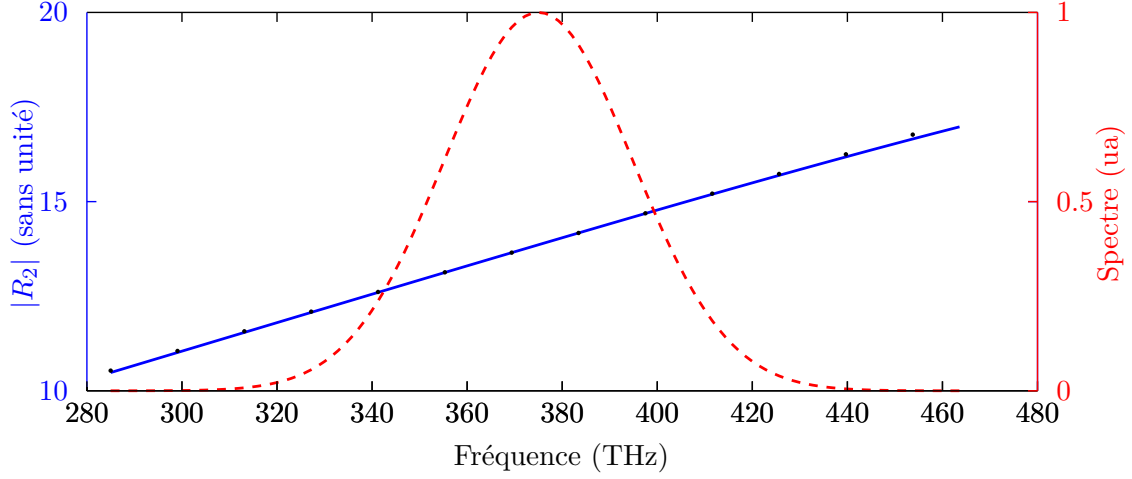


Figure 3.14: Module de la fonction de transfert complexe ( $R_2 = \frac{\mathcal{E}_x}{\mathcal{E}_y}$ ) de deux BSB: l'un en Quartz ( $\delta L_{Quartz} = -20 \mu\text{m}$ ) et l'autre en KDP ( $\delta L_{KDP} = -4.2 \mu\text{m}$ ) et le spectre de l'oscillateur local  $\mathcal{E}_x$  en fonction de la fréquence optique ( $\rho = 99.99998\%$  et Énergie= 0.995). La courbe en points noirs représente la fonction de transfert souhaitée  $R(\omega) \propto i\omega$ .

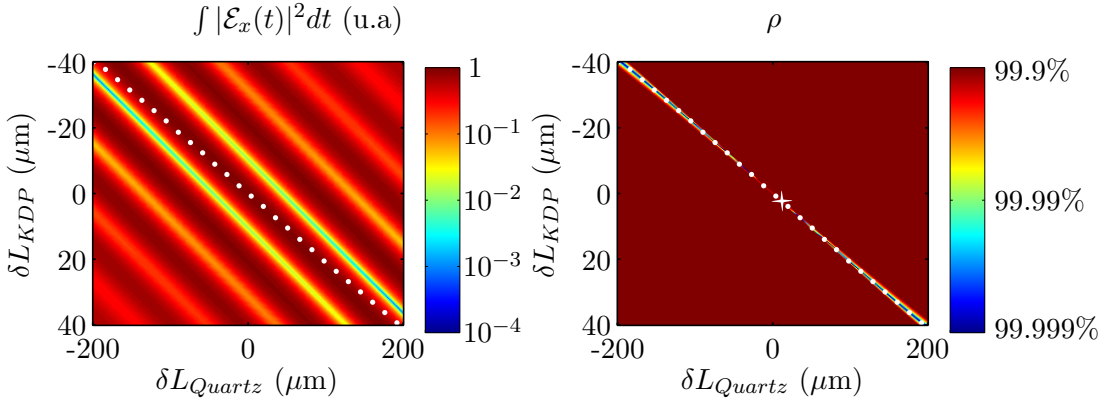


Figure 3.15: Énergie de la polarisation  $\mathcal{E}_x$  et critère de fidélité pour une fonction de transfert du type  $R(\omega) \propto i\omega$  en fonction des épaisseurs de deux BSB en Quartz et KDP pour une fonction de transfert en cotangente. Les courbes à points blancs indiquent les épaisseurs correspondant aux meilleurs critères de fidélité.

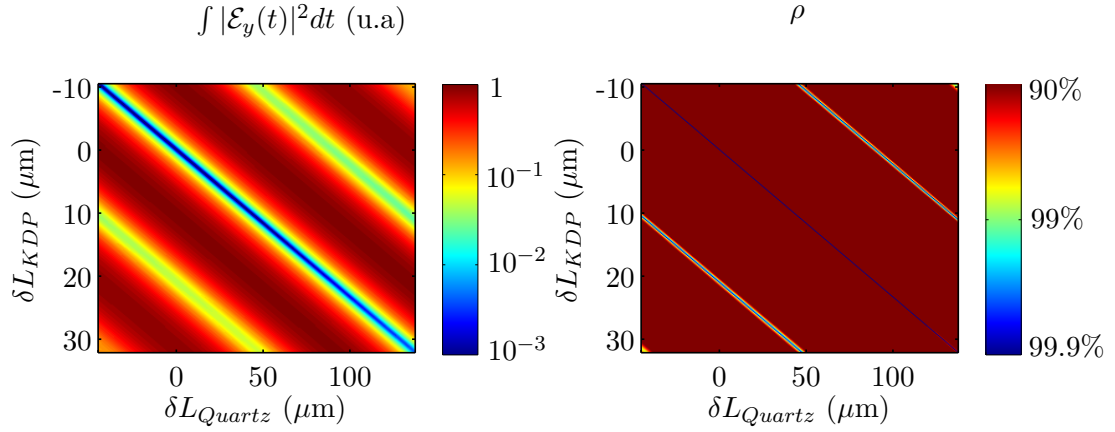


Figure 3.16: Énergie de la polarisation  $\mathcal{E}_y$  et critère de fidélité pour une fonction de transfert du type  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_0)$  en fonction des épaisseurs de deux BSB en Quartz et KDP pour une fonction de transfert en tangente.

Domaine de validité
$ \delta L_b  << \frac{\lambda_0  \Delta n_{g,a} + \Delta n_{\varphi,a} }{2  \Delta n_{\varphi,b} (\Delta n_{g,a} + \Delta n_{\varphi,a}) - \Delta n_{\varphi,a} (\Delta n_{g,b} + \Delta n_{\varphi,b}) }$ <p>et <math>\omega_0 \gg \Delta\omega</math></p>

### Fonction de transfert du type $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_0)$

Les Fig. 3.16 et 3.17 donnent les critères de fidélité pour le mode  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_0)$  pour des fonctions de transfert en tangente et cotangente ainsi que leurs énergies en fonction des épaisseurs de BSB en Quartz et KDP. L'ajout d'un deuxième BSB permet de régler l'amplitude de la fonction de transfert mais n'améliore par le critère de fidélité par rapport à un BSB en Quartz à l'ordre 1.

#### 3.6.4 Un versus deux BSB

En terme de simplicité, l'utilisation d'un seul BSB est attrayante. Elle permet de produire les modes du type  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$  avec un excellent critère de fidélité ( $\rho > 99.99\%$ ), qui n'est pas amélioré par l'ajout d'un deuxième compensateur. Contrairement à la configuration comptant deux compensateurs, elle n'offre cependant pas la possibilité d'ajuster continument l'intensité de l'oscillateur local. Néanmoins l'utilisation des ordres supérieurs permet d'augmenter de façon discrète l'intensité au prix d'un critère

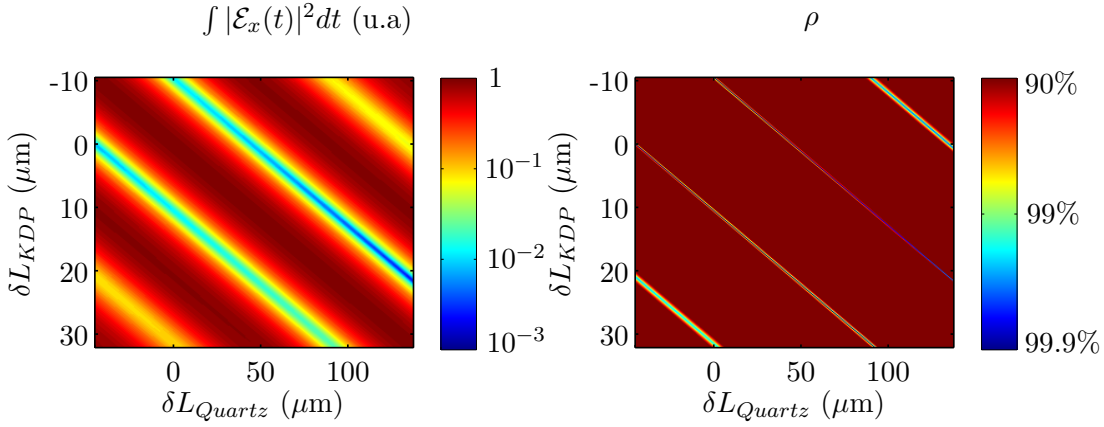


Figure 3.17: Énergie de la polarisation  $\mathcal{E}_x$  et critère de fidélité pour une fonction de transfert du type  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_0)$  en fonction des épaisseurs de deux BSB en Quartz et KDP pour une fonction de transfert en cotangente.

de fidélité moindre. En ce qui concerne la fonction de transfert de la forme  $R(\omega) \propto i\omega$ , un BSB donne un critère de fidélité correcte ( $\rho = 99.99\%$ ) mais une faible intensité d'oscillateur local (inférieure à 0.1). Si on souhaite un oscillateur local plus intense, l'utilisation d'un deuxième BSB améliore considérablement les performances avec un critère de fidélité de près de 99.99998% pour une intensité d'oscillateur local de 0.995. Notons cependant que ce point de fonctionnement est très localisé et qu'il sera nécessaire d'évaluer en continu la fonction de transfert de façon à ajuster finement les épaisseurs de BSB.

### 3.6.5 Conclusion

Ces simulations numériques ne font aucune hypothèse de linéarisation des fonctions de transfert et prennent en compte la dispersion des matériaux. Elles valident totalement les points de fonctionnement que nous avons identifiés par l'approche analytique simplifiée. De plus, elles ont permis de révéler un point de fonctionnement que nous n'avions pas anticipé et qui se révèle particulièrement intéressant. Les valeurs du critère de fidélité et de l'amplitude des fonctions de transfert simulées sont compatibles avec une expérience d'optique quantique. Reste à valider expérimentalement cette approche de façonnage.

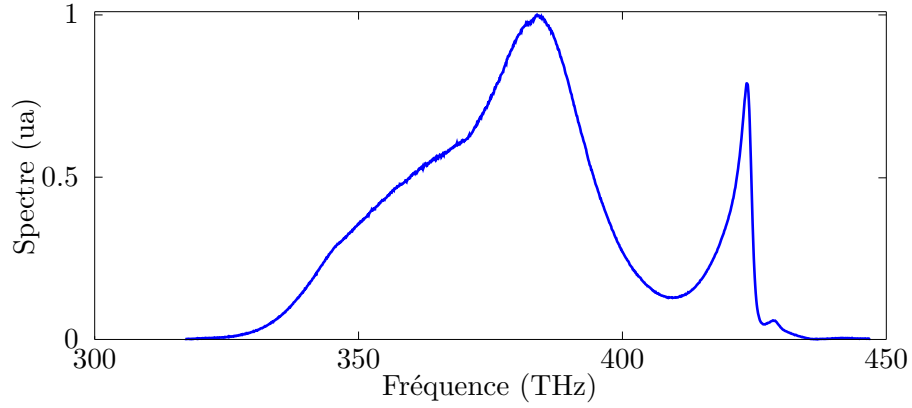


Figure 3.18: Spectre de notre oscillateur laser Synergy Pro (Femtolasers) (Temps d'intégration 10 ms et moyenné 100 fois).

## 3.7 Mise en œuvre expérimentale

### 3.7.1 Problématique

Nous souhaitons mesurer à la fois l'amplitude et la phase spectrale de la fonction de transfert d'une configuration comptant un ou deux BSB. Pour cela, il est nécessaire de mesurer le rapport des spectres et la phase relative de l'oscillateur local et du champ signal polarisés orthogonalement. Il sera nécessaire d'utiliser d'excellentes optiques opérant sur le support du spectre de notre laser (Fig. 3.18).

### 3.7.2 Comment mesurer la fonction de transfert d'un BSB ?

#### Mesures en amplitude et en phase

Pour mesurer l'amplitude de la fonction de transfert, l'approche la plus simple consiste à mesurer directement l'amplitude des composantes de polarisation souhaitées avec un polariseur et un spectromètre. Notons que, comme il s'agit d'une mesure ratiométrique, il n'est pas nécessaire de calibrer l'amplitude absolue mesurée par le spectromètre. Une autre approche consiste à mettre en œuvre une mesure interférométrique pour mesurer la différence de phase spectrale entre les composantes de polarisation ordinaire et extraordinaire du BSB soit la grandeur  $2\delta\phi(\omega)$  avec les notations de l'Eq. 3.35. On en déduit l'amplitude de la fonction de transfert complexe en supposant les axes neutres du BSB à  $45^\circ$  de la polarisation incidente ce qui permet d'écrire (Eq. 3.39):

$$|R_1(\omega)| = \tan \delta\phi(\omega) \quad |R_2(\omega)| = \cot \delta\phi(\omega) \quad (3.69)$$

Quant à la mesure de la phase de la fonction de transfert, il faut aussi faire appel à un montage interférométrique dans lequel on fait interférer, cette fois-ci, l'oscillateur local et le champ signal.

#### L'interférométrie spectrale avec des milieux biréfringents

L'interférométrie spectrale [63–66] se prête particulièrement bien à ce type de mesures puisqu'elle ne nécessite pas de pièces mobiles mais seulement un retard suffisant entre les impulsions que l'on souhaite faire interférer. Pour introduire un retard important entre les deux polarisations, nous pourrions implémenter un interféromètre classique avec des polariseurs à la place de lames séparatrices mais, comme nous allons le voir, il est beaucoup plus simple d'utiliser une lame biréfringente [72]. En effet, un tel matériau, parfaitement transparent, d'épaisseur suffisante et dont les axes neutres sont alignés avec les polarisations que l'on souhaite faire interférer, va introduire un retard parfaitement stable entre ces deux polarisations. En plaçant ensuite un analyseur à  $45^\circ$  des axes de cette lame biréfringente (Fig. 3.19), on peut mesurer avec un spectromètre l'interférence dans le domaine spectral entre ces deux composantes de polarisation. La différence de phase entre ces deux composantes s'obtient avec le traitement de Fourier des spectres cannelés [65, 66]. Néanmoins, il y a deux contributions à cette différence de phase: à la fois celle du BSB mais aussi la dispersion introduite par la lame biréfringente. Plutôt que de chercher à annuler la dispersion de la lame biréfringente en la combinant avec un autre matériau biréfringent [70] nous allons procéder à deux mesures consécutives. Nous mesurons la phase spectrale introduite par la lame biréfringente sans le BSB notée  $\varphi_{ref}(\omega)$ , puis la phase totale avec le BSB notée  $\varphi(\omega)$ . Dans le cas de la mesure d'amplitude, les axes de la lame sont alignés avec ceux du BSB et on obtient  $\delta\phi(\omega) = \frac{\varphi(\omega) - \varphi_{ref}(\omega)}{2}$ . Tandis que dans le cas de la mesure de la phase de la fonction de transfert, les axes de la lames sont à  $45^\circ$  de ceux du BSB et on cherche alors à vérifier que  $\varphi(\omega) - \varphi_{ref}(\omega) = \text{angle}(R(\omega)) \approx \frac{\pi}{2}$  (où  $\text{angle}()$  est la fonction qui extrait la phase d'une quantité complexe). Notons que la stabilité du retard produit par une lame biréfringente permet de moyenner un grand nombre de spectres sans risquer de brouiller les franges d'interférence.

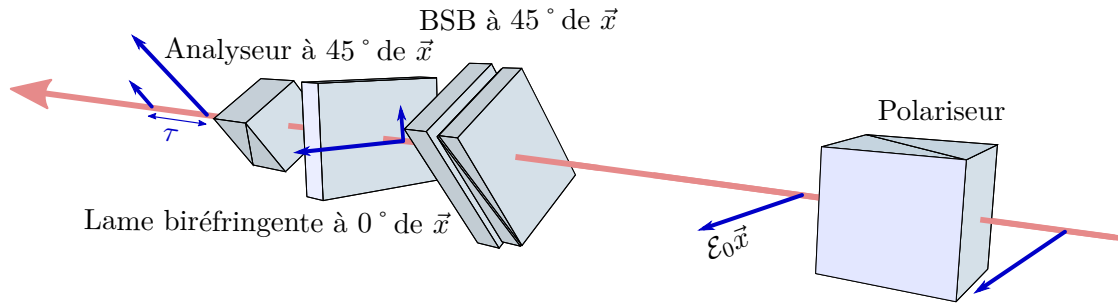


Figure 3.19: Schéma expérimental pour une mesure de la phase spectrale de la fonction de transfert d'un BSB.

### Alignement et mesures

Il est très important que les différents éléments du montage (Fig. 3.19) soient parfaitement alignés, notamment que les angles soient bien contrôlés. Pour cela, voici tout d'abord la procédure que nous avons suivie dans le cas de la mesure d'amplitude indirecte (par une approche interférométrique).

1. Les deux polariseurs sont ajustés pour être parfaitement orthogonaux en minimisant le signal sur le spectromètre. Cela nous donne une référence angulaire pour l'analyseur noté  $0^\circ$ .
2. On place le BSB avec une épaisseur non nulle entre les deux polariseurs croisés. On ajuste son angle de façon à le régler à sa position neutre, c'est-à-dire avec ses axes alignés avec ceux des polariseurs, en minimisant le signal du spectromètre.
3. On introduit la lame biréfringente entre le BSB et l'analyseur (c'est-à-dire le second polariseur). On positionne l'analyseur à  $45^\circ$  et on aligne l'un des axes neutres de la lame avec celui de l'analyseur en annulant le contraste des franges spectrales. Notons que nous ne disposons pas d'une monture de rotation graduée pour la lame biréfringente et que cette approche homodyne est particulièrement sensible pour ajuster finement l'angle de la lame.
4. On utilise la monture de rotation de précision du BSB pour lui ajouter un angle de  $45^\circ$  et on positionne l'analyseur à  $0^\circ$  (sa position initiale) de façon à faire interférer les impulsions de polarisations orthogonales produites par la lame biréfringente.
5. A ce stade les axes de la lame sont alignés avec ceux du BSB et on peut donc

mesurer par interférométrie spectrale le déphasage  $\varphi(\omega)$  entre les composantes ordinaire et extraordinaire du BSB.

6. Il reste à mesurer le déphasage introduit par la lame biréfringente. Pour cela on retire le BSB du montage et on mesure le spectre cannelé correspondant à  $\varphi_{ref}(\omega)$ .

Détaillons le cas d'une mesure de la phase de la fonction de transfert (lame à  $0^\circ$ ).

1. Les deux polariseurs sont ajustés pour être parfaitement orthogonaux en minimisant le signal sur le spectromètre. Cela nous donne une référence angulaire pour l'analyseur noté  $0^\circ$ .
2. On place le BSB avec une épaisseur non nulle entre les deux polariseurs croisés. On ajuste son angle de façon à le régler à sa position neutre, c'est-à-dire avec ses axes alignés avec ceux des polariseurs, en minimisant le signal du spectromètre.
3. On introduit la lame biréfringente entre le BSB et l'analyseur. On aligne l'un des axes neutres de la lame avec celui de l'analyseur en annulant le contraste des franges spectrales.
4. On utilise la monture de rotation de précision du BSB pour lui ajouter un angle de  $45^\circ$  et on positionne l'analyseur à  $45^\circ$  de façon à faire interférer les impulsions de polarisations orthogonales produites par la lame biréfringente.
5. A ce stade les axes de la lame coïncident avec la verticale et l'horizontale et on peut donc mesurer par interférométrie spectrale le déphasage  $\varphi(\omega)$  entre les composantes de polarisation verticale et horizontale.
6. Il reste à mesurer le déphasage introduit par la lame biréfringente. Pour cela on retire le BSB du montage et on mesure le spectre cannelé correspondant à  $\varphi_{ref}(\omega)$ .

Pour réaliser une simple mesure d'amplitude, il suffit de reprendre les étapes 1 et 2, puis d'enregistrer les spectres correspondant aux position  $0^\circ$  et  $90^\circ$  de l'analyseur.

#### 3.7.3 Composants optiques et source laser

Nous disposons d'un BSB en Quartz (Fichou). Nous utilisons des polariseurs de Glan-Thompson (GTH10M, Thorlabs, USA) spécifiés pour un taux d'extinction de 100000:1,



ce qui est en accord avec nos mesures ( $\simeq 2 \cdot 10^{-5}$ ). Remarquons qu'il faut placer la sphère intégratrice suffisamment loin de l'analyseur (au moins à 50 cm) pour ne pas capter les photons diffusés par le bloqueur de faisceau situé au niveau de l'autre sortie de l'analyseur. Nous utilisons une lame de  $YVO_4$  d'environ 2 mm pour introduire le retard nécessaire entre les deux polarisations. Les mesures sont effectuées par l'intermédiaire d'une sphère intégratrice Ocean Optics raccordée par fibre optique à un spectromètre Princeton Instruments (série Acton). Nous utilisons un oscillateur Titane:Saphir commercial (Synergy PRO, Femtolasers, Autriche) de puissance de sortie de l'ordre de 430 mW et de taux de répétition 75 MHz. Son spectre est représenté Fig. 3.18 et correspond à des impulsions limitées par transformée de Fourier de l'ordre de 10 fs.

#### 3.7.4 Résultats

Nous réalisons ces mesures avant tout pour valider notre modèle des BSB et donc pour confirmer notre approche de façonnage. Notons que nous ne disposons que d'un seul BSB en Quartz et par conséquent, nous n'étudierons que les montages à un BSB.

#### Détermination de l'épaisseur de BSB

Nous contrôlons l'épaisseur d'un BSB par l'intermédiaire d'un vernier de résolution micrométrique. Pour connaître la correspondance entre les valeurs indiquées par le vernier et l'épaisseur de BSB introduite, il est nécessaire d'identifier au moins deux points d'épaisseurs connues, en supposant une loi de correspondance linéaire (ce qui revient à supposer les prismes du BSB correctement taillés). Pour cela, on choisit les configurations d'épaisseur nulle et d'épaisseur équivalente à une lame demi-onde car ces deux points de fonctionnement sont facilement identifiables. On place le BSB entre polariseurs croisés et à  $45^\circ$  de leurs axes. On cherche tout d'abord à éteindre totalement le spectre, ce qui correspond à une épaisseur de BSB nulle. Ensuite nous tournons l'axe de l'analyseur de  $90^\circ$  et nous augmentons l'épaisseur de BSB de façon à atteindre la première extinction partielle, soit l'équivalent d'une lame demi-onde chromatique (ordre 1). Cette configuration correspond à une épaisseur  $\delta L = \frac{\lambda_0/2}{\Delta n_\varphi(\omega_0)}$ , où  $\lambda_0$  est la longueur d'onde d'extinction totale. On dispose alors de deux points connus pour établir la loi de correspondance entre les épaisseurs et la position du vernier. On observe un écart de quelques pourcents entre les épaisseurs mesurées par cette technique et celles obtenues

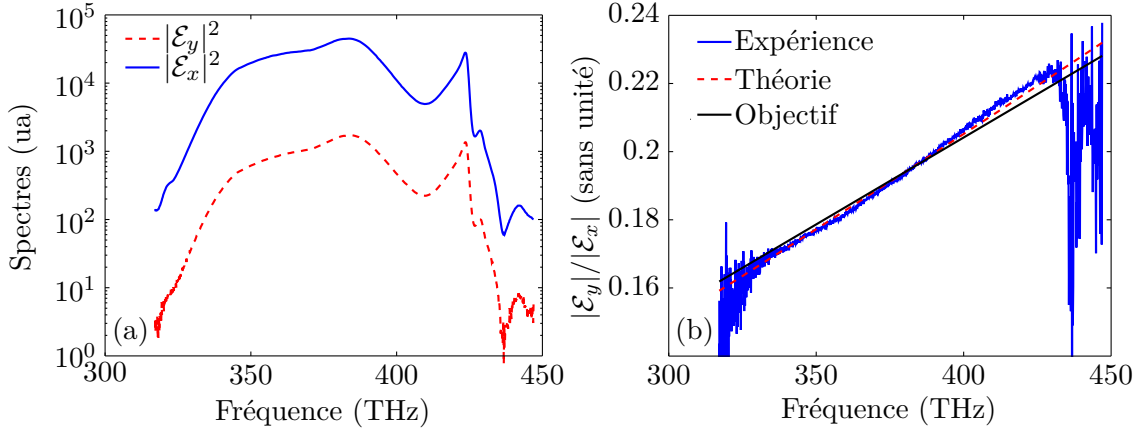


Figure 3.20: (a): Spectres  $|\mathcal{E}_x(\omega)|^2$  et  $|\mathcal{E}_y(\omega)|^2$  après un compensateur en Quartz avec une épaisseur  $\delta L_{\text{Quartz}} = 5.4 \mu\text{m}$  en fonction de la fréquence optique. Le temps d'acquisition est de 10 ms et chaque spectre est moyenné 100 fois.

(b): Module des fonctions de transfert: expérimentale  $|R_{\text{exp}}(\omega)| = \sqrt{|\mathcal{E}_y(\omega)|^2/|\mathcal{E}_x(\omega)|^2}$  (calculée à partir des spectres de (a)), théorique ( $\delta L_{\text{Quartz}} = 5.4 \mu\text{m}$ ) et optimale ( $|R(\omega)| \propto |\omega|$ ).

par ajustement des courbes expérimentales. Il y a deux sources d'incertitude: bien évidemment celle sur la détermination des deux points de la calibration mais aussi celle liée aux fuites des polariseurs qui introduisent (au premier ordre) une constante à la courbe mesurée (de l'ordre de  $4.5 \cdot 10^{-3}$  sur les courbes en amplitude) et trompe par conséquent l'ajustement. Dans la suite les valeurs d'épaisseurs indiquées sont celles obtenues par ajustement des courbes.

### Fonction de transfert du type $R(\omega) \propto i\omega$

**Mesure de l'amplitude** La Fig. 3.20(a) représente les spectres de  $\mathcal{E}_x$  et  $\mathcal{E}_y$  pour une faible épaisseur de BSB en Quartz ( $\delta L_{\text{Quartz}} = 5.4 \mu\text{m}$ ) afin de produire une fonction de transfert du type  $R(\omega) \propto i\omega$ . Les spectres ont été moyennés 100 fois pour minimiser l'impact du bruit après passage à la racine carrée. L'intensité de l'oscillateur local  $\mathcal{E}_y$  correspond à 3.6% de l'intensité du champ signal  $\mathcal{E}_x$ . On déduit de ces spectres l'amplitude de la fonction de transfert représentée sur La Fig. 3.20(b). Sur la même figure sont représentées l'amplitude de la fonction de transfert théorique (Eq. 3.39) et l'amplitude de la fonction de transfert optimale. La fonction de transfert produite est remarquablement proche de la fonction de transfert en  $R(\omega) \propto i\omega$  que l'on s'était fixée comme objectif. Comme attendu, il subsiste un léger écart à l'objectif du fait qu'on

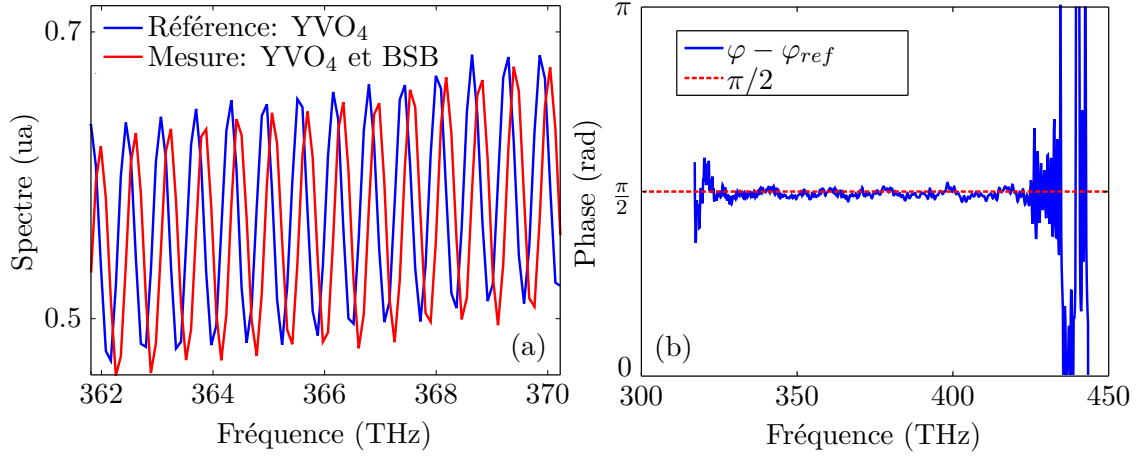


Figure 3.21: (a): Spectres cannelés résultant de l'interférence des champs  $\mathcal{E}_x(\omega)$  et  $\mathcal{E}_y(\omega)$  après un compensateur en Quartz avec une épaisseur  $\delta L_{Quartz} = 5.4 \mu m$  en fonction de la fréquence optique. Le temps d'acquisition est de 10 ms et le spectre est moyenné 100 fois.

(b): Différence de phase extraire des spectres de (a) et différence de phase théorique attendue pour un BSB à  $45^\circ$  de la polarisation incidente.

ne produit pas exactement  $R(\omega) \propto i\omega$  avec un seul BSB mais  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$  avec  $\omega_1 \neq 0$ . Notons qu'il subsiste un écart de l'ordre du pourcent entre la fonction de transfert produite et la fonction de transfert simulée avec les formules de Sellmeier du Quartz. On peut supposer que cela est lié à un mauvais alignement des composants du BSB. En effet nous avons déjà observé une erreur d'alignement de plusieurs degrés entre l'un des prismes du BSB avec la lame à faces parallèles collée à l'autre prisme. Cet écart a été corrigé, mais il est envisageable qu'il subsiste une erreur d'alignement entre les deux éléments collés.

**Mesure de la phase** La Fig. 3.21(a) représente les spectres cannelés de référence (sans BSB avec la lame biréfringente) et avec le BSB (avec la lame biréfringente). On peut clairement identifier le décalage d'un quart de période entre les franges des deux spectres. On peut observer ce décalage sur tout le spectre (non représenté), ce qui traduit un déphasage absolu de  $\frac{\pi}{2}$  entre le champ signal et l'oscillateur local. Un traitement de Fourier permet d'extraire la phase spectrale et révèle cette phase constante de  $\frac{\pi}{2}$  (Fig. 3.21(b)). Notons la présence d'une phase oscillante de très faible amplitude (0.1 rad) et de période 19 THz (soit 40 nm). Ce type de phase peut résulter des traitements antireflets présents sur les composants optiques utilisés.

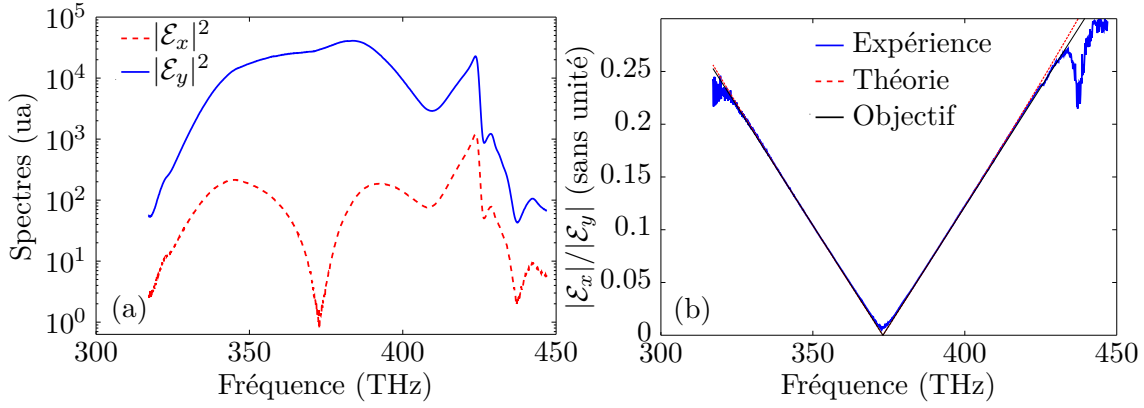


Figure 3.22: (a): Spectres  $|\mathcal{E}_x(\omega)|^2$  et  $|\mathcal{E}_y(\omega)|^2$  après un compensateur en Quartz avec une épaisseur  $\delta L_{\text{Quartz}} = 45.1 \mu\text{m}$  en fonction de la fréquence optique. Le temps d'acquisition est de 10 ms et chaque spectre est moyenné 1000 fois.

(b): Module des fonctions de transfert: expérimentale  $|R_{\text{exp}}(\omega)| = \sqrt{\frac{|\mathcal{E}_x(\omega)|^2}{|\mathcal{E}_y(\omega)|^2}}$  (calculée à partir des spectres de (a)), théorique ( $\delta L_{\text{Quartz}} = 45.1 \mu\text{m}$ ) et souhaitée ( $|R(\omega)| \propto |\omega - \omega_0|$ ).

### Fonction de transfert du type $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$

**Mesure de l'amplitude** La Fig. 3.22(a) représente les spectres des champs  $\mathcal{E}_x$  et  $\mathcal{E}_y$  après un BSB à l'ordre 1 mesurés avec un temps d'intégration de 10 ms et moyennés 1000 fois. L'intensité de l'oscillateur local est de l'ordre de 1% de l'intensité du champ local. La Fig. 3.22(b) représente la fonction de transfert obtenue à partir des spectres de (a) ainsi que les fonctions de transfert théorique et idéale. Notons que le minimum de la fonction de transfert est de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-3}$ , ce qui correspond à un taux d'extinction en intensité de l'ordre de  $3 \cdot 10^{-5}$ , soit le taux spécifié pour nos polariseurs de Glan-Thomson. La Fig. 3.23 représente l'amplitude de la fonction de transfert par une mesure en phase. Il y a un bon accord avec la mesure en amplitude mais la courbe est trop bruitée pour évaluer finement l'écart à la courbe théorique.

**Mesure de la phase** La Fig. 3.24 représente la mesure de la différence de phase entre l'oscillateur local et le champ signal pour le même dispositif. On observe bien le changement de signe de la fonction de transfert en  $\nu_1 \approx 373 \text{ THz}$  qui se manifeste par un saut de phase de  $\pi$ . Comme attendu, on mesure un terme de phase constante de valeur  $\pi/2$ . Notons qu'on observe ici la présence d'une phase oscillante de faible amplitude ( $0.1$

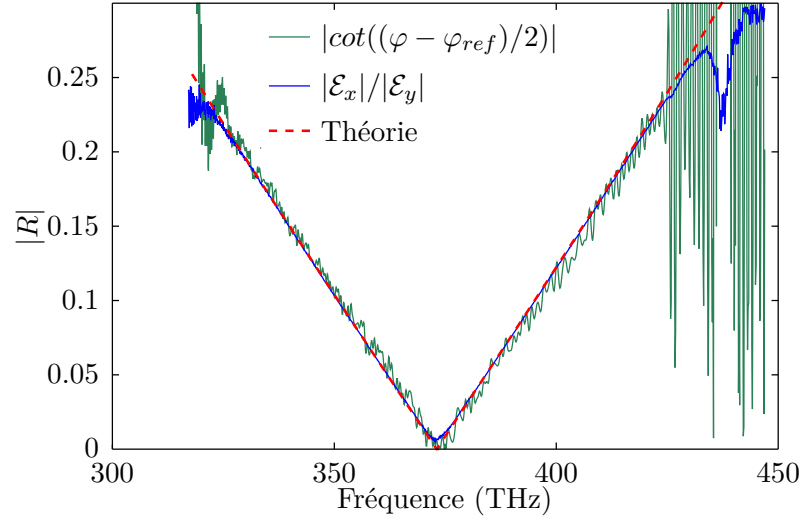


Figure 3.23: Module des fonctions de transfert: expérimentale à partir de mesures de phases:  $|R_{exp}(\omega)| = |\cot(\frac{\varphi(\omega) - \varphi_{ref}(\omega)}{2})|$  ( $\delta L_{Quartz} = 45.1 \mu m$ ) (courbe verte), expérimentale à partir de mesures de spectres  $|R_{exp}(\omega)| = \sqrt{\frac{|\mathcal{E}_x(\omega)|^2}{|\mathcal{E}_y(\omega)|^2}}$  (courbe bleue), théorique ( $\delta L_{Quartz} = 45.1 \mu m$ ) (courbe rouge).

rad) et de période  $\simeq 10$  THz (20 nm).

**Paramètre ajustable** La Fig. 3.25 montre plusieurs amplitudes de fonctions de transfert pour diverses épaisseurs de BSB en Quartz. Elle démontre qu'il est possible d'ajuster  $\omega_1$  pour une utilisation à l'ordre 1 d'un BSB afin de produire une fonction de transfert du type  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$ . Notons que l'extinction n'est pas aussi bonne qu'auparavant (de l'ordre de  $4 \cdot 10^{-4}$  en intensité). Cela provient probablement du fait que le BSB n'était pas exactement à  $45^\circ$  des polariseurs.

### 3.7.5 Conclusion

Nous avons mesuré les amplitudes des fonctions de transfert d'un BSB en Quartz à l'ordre 0 et à l'ordre 1 par deux approches. Une première a consisté à mesurer les spectres de l'oscillateur local et du champ signal. La deuxième utilise l'interférométrie spectrale avec une lame biréfringente pour introduire le retard nécessaire entre les champs que l'on souhaite faire interférer. Nous avons utilisé le même type de mesure interférométrique pour mesurer la phase de la fonction de transfert. Ces mesures valident notre approche de façonnage à un BSB pour produire des fonctions de transfert du type  $R(\omega) \propto i\omega$  et  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$ . L'écart mesuré avec la théorie, même s'il est faible, doit être mieux

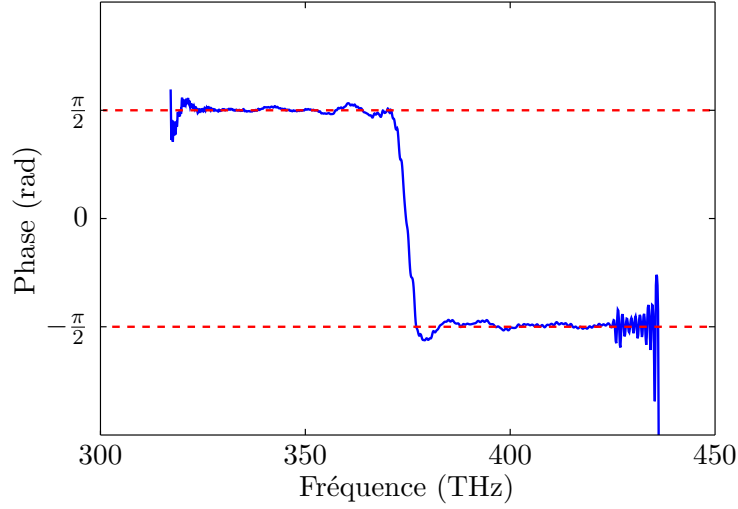


Figure 3.24: Différence de phase entre les champs  $\mathcal{E}_x$  et  $\mathcal{E}_y$  après un BSB en quartz ( $\delta L_{\text{Quartz}} = 45.1 \mu\text{m}$ ) pour produire une fonction de transfert du type  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_0)$  extraite des spectres cannelés résultant de l'interférence entre ces deux champs mesurés avec un temps d'intégration de 10 ms et moyennés 1000 fois.

compris avant une implémentation pour une mesure optimale d'optique quantique. On pourrait par exemple reprendre les mesures en phase de l'amplitude de la fonction de transfert en moyennant sur un plus grand nombre de spectres pour diminuer le niveau de bruit. Il serait intéressant de valider les montages à deux BSB, notamment le point de fonctionnement qui est apparu lors des simulations numériques et qui permet de produire la fonction de transfert  $R(\omega) \propto i\omega$  avec une excellente fidélité et surtout avec un oscillateur local directement intense par rapport au champ signal.

### 3.8 Conclusion

Nous avons élaboré une méthode de façonnage originale pour produire des formes d'impulsions spécifiques pour des expériences d'optique quantique de mesures optimales de temps et de dispersion. Cette approche s'appuyant sur des compensateurs de Babinet-Soleil-Bravais ne permet de produire qu'une famille limitée de fonction de transfert mais a l'avantage de ne pas modifier le profil spatial du champ électrique et n'introduit pas de nouvelle source de bruit contrairement aux façonneurs d'impulsions programmables de type ligne 4f. Nous avons validé expérimentalement cette approche en mesurant l'amplitude et la phase d'un dispositif de façonnage avec un compensateur de Babinet-Soleil-Bravais en Quartz à l'ordre 0 et à l'ordre 1. Pour pouvoir implémenter cette

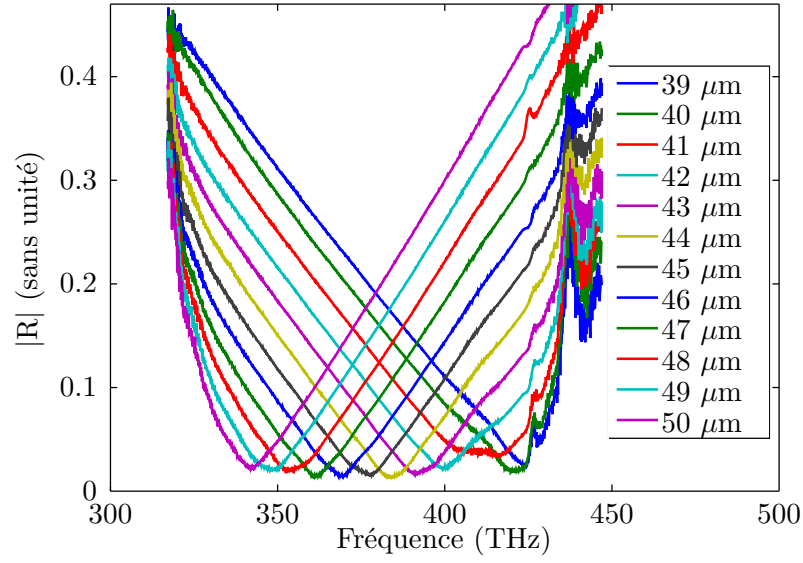


Figure 3.25: Modules des fonctions de transfert expérimentales d'un BSB en Quartz:  $|R_{exp}(\omega)| = \sqrt{\frac{|\mathcal{E}_x(\omega)|^2}{|\mathcal{E}_y(\omega)|^2}}$  pour des épaisseurs  $\delta L_{Quartz}$  de 39 à 50  $\mu\text{m}$ . La fonction de transfert souhaitée est de la forme  $R_{obj}(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$ . Les spectres correspondant ont été mesurés avec des temps d'intégration de 10 ms et moyennés 200 fois.

technique dans une expérience d'optique quantique, il faudra comprendre et corriger si nécessaire l'écart résiduel entre les fonctions de transfert produites et théoriques.





# Conclusion

Le premier objectif de cette thèse était le façonnage d'impulsions de spectre large appliqué à la microscopie non-linéaire *in vivo*, notamment pour faire l'acquisition multiplexée de plusieurs signaux non-linéaires dans des conditions standards de microscopie. Pour cela nous avons développé un façonneur d'impulsions à commutation rapide original qui permet le façonnage en phase et en amplitude spectrales [60,61] et la commutation à une fréquence de l'ordre du kHz entre deux formes d'impulsions arbitraires.

Ce dispositif a été utilisé pour réaliser une expérience de microscopie à deux photons sélective d'un embryon de drosophile en cours de développement [68]. Cette expérience a montré qu'il était possible d'utiliser le façonnage d'impulsions pour réaliser l'acquisition quasi-simultanée de deux signaux non-linéaires avec des temps d'acquisition et une résolution standards. Elle a aussi permis de valider l'utilisation d'une phase spectrale du troisième ordre pour une expérience de contrôle cohérent de l'absorption à deux photons.

Dans un deuxième temps, nous avons cherché à la fois à améliorer les performances de notre système mais aussi à le simplifier de sorte à le rendre compatible avec un microscope multiphoton standard. Nous avons donc élaboré un nouveau dispositif de façonnage à commutation rapide qui combine un compresseur à prismes [33] pour produire une phase spectrale du troisième ordre avec un schéma d'entrelacement temporel des trains d'impulsions [172,175]. Cette approche permet à la fois de produire les formes d'impulsions adaptées pour une expérience de microscopie à deux photons sélective mais aussi une acquisition véritablement simultanée des différents signaux avec une fréquence de commutation entre les formes d'impulsions de 150 MHz. Nous avons validé ce schéma de façonnage en imageant deux fluorophores simultanément dans un embryon de drosophile avec un seul détecteur en comptage de photon, synchronisé avec les im-

pulsions incidentes [105]. Nous avons ensuite montré dans une deuxième expérience que cette approche permettait d'imager simultanément trois fluorophores spectralement proches en combinant l'excitation sélective avec l'approche plus classique du filtrage spectral de la fluorescence émise par l'échantillon.

Un des prolongements immédiats de ce travail est l'augmentation du nombre de fluorophores imagés simultanément. Pour cela, nous souhaitons mettre en place deux évolutions majeures du montage expérimental.

Il sera tout d'abord nécessaire d'éliminer le phénomène de diaphonie qui survient lorsque des photons de fluorescence émis tardivement sont attribués au mauvais canal d'excitation. Dans cette optique on pourra implémenter le schéma d'entrelacement temporel des impulsions avec un laser de cadence plus faible (de l'ordre de quelques MHz) ou bien commuter rapidement entre plusieurs chemins avec un miroir galvanométrique, auquel cas la fréquence de commutation sera limitée à quelques kHz.

Afin d'augmenter le nombre de fluorophores adressés simultanément il faudra aussi produire des spectres à deux photons couvrant une plus grande largeur spectrale. Dans cette perspective nous avons commencé à travailler sur une approche de façonnage dit non-linéaire qui consiste à utiliser une fibre micro-structurée ou fibre à cristal photonique (photonic crystal fiber en anglais ou PCF) avec des impulsions ultracourtes façonnées de sorte à produire un spectre de forme contrôlée. Les PCF les plus répandues sont des cristaux photoniques 2D confinant le champ électrique dans un cœur de taille micrométrique et dont le choix de la géométrie des microstructures permet de contrôler la relation de dispersion du guide d'onde. Cette propriété marque une différence importante avec les fibres monomodes classiques car elle donne par exemple la possibilité d'avoir une dispersion nulle pour une ou deux longueurs d'onde. Un fort confinement spatial du champ électrique sur de longues distances (du mm à plusieurs mètres) et une dispersion contrôlée rendent possibles des effets non-linéaires très efficaces (effet Kerr, diffusion Raman) à l'origine d'une forte déformation du spectre avec un oscillateur laser. Le choix des paramètres de la PCF (structure, longueur) et la forme des impulsions incidentes devraient permettre, au choix, d'élargir considérablement le spectre par génération de supercontinuum [190] ou bien, avec une fibre ayant deux zéros de dispersion (pour deux

différentes longueurs d'onde), de redistribuer l'énergie du spectre fondamental de façon à produire un spectre piqué autour de deux longueurs d'onde [191]. Cette approche de façonnage non-linéaire avec une PCF, combinée avec un schéma de multiplexage temporel, devrait donc permettre la microscopie à deux photons simultanée d'un grand nombre de fluorophores.

Cette thèse a aussi été l'occasion d'adresser une problématique très différente: la mesure optimale d'un paramètre contenu dans la dépendance temporelle d'un champ électrique. Dans le cadre d'une collaboration avec le groupe d'Optique Quantique Multimode du LKB, nous avons développé une approche originale de façonnage adaptée à cette application. En effet, l'utilisation d'un ou de deux compensateurs de Babinet-Soleil-Bravais permet de produire des fonctions de transfert du type  $R(\omega) \propto i\omega$  et  $R(\omega) \propto i(\omega - \omega_1)$  ce qui correspond dans le domaine temporel à la dérivée du champ et de son enveloppe. Dans un premier temps, cette technique de façonnage devrait permettre l'implémentation d'une expérience de mesure optimale de dispersion. Notons que pour implémenter une mesure optimale de distance, il sera nécessaire d'utiliser une source de spectre plus large, par exemple par génération de supercontinuum dans une fibre micro-structurée comme évoqué plus haut.



## Références bibliographiques

- [1] W. Denk, J. Strickler, and W. Webb, “Two-photon laser scanning fluorescence microscopy,” *Science* **248**, 73–76 (1990).
- [2] W. R. Zipfel, R. M. Williams, and W. W. Webb, “Nonlinear magic: multiphoton microscopy in the biosciences.” *Nature biotechnology* **21**, 1369–77 (2003).
- [3] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, 2003).
- [4] P. N. Butcher and D. Cotter, *The elements of nonlinear optics* (Cambridge University Press, Cambridge (UK), 1990).
- [5] M. Joffre, “Optique non-linéaire en régimes continu et femtoseconde,” (2010).
- [6] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, “60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser,” *Optics Letters* **16**, 42 (1991).
- [7] W. Mohler, A. C. Millard, and P. J. Campagnola, “Second harmonic generation imaging of endogenous structural proteins,” *Methods* **29**, 97–109 (2003).
- [8] L. Moreaux, O. Sandre, and J. Mertz, “Membrane imaging by second-harmonic generation microscopy,” *JOSA B* **17**, 1685–1694 (2000).
- [9] D. Oron, D. Yelin, E. Tal, S. Raz, R. Fachima, and Y. Silberberg, “Depth-resolved structural imaging by third-harmonic generation microscopy.” *Journal of structural biology* **147**, 3–11 (2004).
- [10] C.-K. Sun, S.-W. Chu, S.-Y. Chen, T.-H. Tsai, T.-M. Liu, C.-Y. Lin, and H.-J. Tsai, “Higher harmonic generation microscopy for developmental biology.” *Journal of structural biology* **147**, 19–30 (2004).

- [11] N. Olivier, M. A. Luengo-Oroz, L. Duloquin, E. Faure, T. Savy, I. Veilleux, X. Solinas, D. Débarre, P. Bourguin, A. Santos, N. Peyri  ras, and E. Beaurepaire, “Cell lineage reconstruction of early zebrafish embryos using label-free nonlinear microscopy.” *Science* **329**, 967–71 (2010).
- [12] Y. Wang, C.-Y. Lin, A. Nikolaenko, V. Raghunathan, and E. O. Potma, “Four-wave mixing microscopy of nanostructures,” *Advances in Optics and Photonics* **3**, 1 (2010).
- [13] P. Mahou, N. Olivier, G. Labroille, L. Duloquin, J.-M. Sintes, N. Peyri  ras, R. Legouis, D. Débarre, and E. Beaurepaire, “Third-harmonic generation, four-wave mixing microscopy of tissues and embryos,” *Biomedical Optics Express* **2**, 2837 (2011).
- [14] J.-X. Cheng and X. S. Xie, “Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microscopy: Instrumentation, Theory, and Applications,” *The Journal of Physical Chemistry B* **108**, 827–840 (2004).
- [15] A. Volkmer, “Vibrational imaging and microspectroscopies based on coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy,” *Journal of Physics D: Applied Physics* **38**, R59–R81 (2005).
- [16] W. R. Zipfel, R. M. Williams, R. Christie, A. Y. Nikitin, B. T. Hyman, and W. W. Webb, “Live tissue intrinsic emission microscopy using multiphoton-excited native fluorescence and second harmonic generation.” *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **100**, 7075–80 (2003).
- [17] D. Débarre, W. Supatto, A. Pena, A. Fabre, T. Tordjmann, L. Combettes, M. Schanne-Klein, and E. Beaurepaire, “Imaging lipid bodies in cells and tissues using third-harmonic generation microscopy,” *Nature Methods* **3**, 47 (2006).
- [18] D. Meshulach and Y. Silberberg, “Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse,” *Nature* **396**, 239–242 (1998).
- [19] N. Dudovich, D. Oron, and Y. Silberberg, “Single-pulse coherently controlled nonlinear Raman spectroscopy and microscopy.” *Nature* **418**, 512–4 (2002).

- [20] I. Pastirk, J. Dela Cruz, K. Walowicz, V. Lozovoy, and M. Dantus, “Selective two-photon microscopy with shaped femtosecond pulses,” *Optics Express* **11**, 1695 (2003).
- [21] M. Dantus and V. V. Lozovoy, “Experimental coherent laser control of physico-chemical processes.” *Chemical reviews* **104**, 1813–59 (2004).
- [22] J. P. Ogilvie, K. J. Kubarych, A. Alexandrou, and M. Joffre, “Fourier transform measurement of two-photon excitation spectra: applications to microscopy and optimal control,” *Optics Letters* **30**, 911 (2005).
- [23] J. P. Ogilvie, D. Débarre, X. Solinas, J.-L. Martin, E. Beaurepaire, and M. Joffre, “Use of coherent control for selective two-photon fluorescence microscopy in live organisms,” *Optics Express* **14**, 759 (2006).
- [24] B. Lamine, C. Fabre, and N. Treps, “Quantum Improvement of Time Transfer between Remote Clocks,” *Physical Review Letters* **101**, 1–4 (2008).
- [25] O. Pinel, “Optique quantique multimode avec des peignes de fréquence,” Ph.D. thesis (2010).
- [26] J. Ye, “Absolute measurement of a long, arbitrary distance to less than an optical fringe,” *Optics Letters* **29**, 1153 (2004).
- [27] G. M. Harry, “Advanced LIGO: the next generation of gravitational wave detectors,” *Classical and Quantum Gravity* **27**, 084006 (2010).
- [28] A. Monmayrant, S. Weber, and B. Chatel, “A newcomer’s guide to ultrashort pulse shaping and characterization,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **43**, 103001 (2010).
- [29] E. Treacy, “Optical pulse compression with diffraction gratings,” *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **5**, 454–458 (1969).
- [30] F. Druon, M. Hanna, G. Lucas-Leclin, Y. Zaouter, D. Papadopoulos, and P. Georges, “Simple and general method to calculate the dispersion properties of complex and aberrated stretchers-compressors,” *JOSA B* **25**, 754–762 (2008).

- [31] O. E. Martinez, “3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion: Application to fiber compensation in 1.3-1.6  $\mu\text{m}$  region,” *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **23**, 59–64 (1987).
- [32] D. Strickland and G. Mourou, “Compression of amplified chirped optical pulses,” *Optics Communications* **56**, 219–221 (1985).
- [33] R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon, “Negative dispersion using pairs of prisms.” *Optics letters* **9**, 150–2 (1984).
- [34] O. E. Martinez and J. Gordon, “Negative group-velocity dispersion using refraction,” *JOSA A* **1**, 1003–1006 (1984).
- [35] R. Sherriff, “Analytic expressions for group-delay dispersion and cubic dispersion in arbitrary prism sequences,” *JOSA B* **15**, 1224–1230 (1998).
- [36] B. Proctor and F. Wise, “Quartz prism sequence for reduction of cubic phase in a mode-locked Ti:Al(2)O(3) laser.” *Optics letters* **17**, 1295–7 (1992).
- [37] R. L. Fork, C. H. B. Cruz, P. C. Becker, and C. V. Shank, “Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation,” *Optics Letters* **12**, 483 (1987).
- [38] P. Tournois, “New diffraction grating pair with very linear dispersion for laser pulse compression,” *Electronics Letters* **29**, 1414 (1993).
- [39] M. E. Fermann, V. da Silva, D. A. Smith, Y. Silberberg, and A. M. Weiner, “Shaping of ultrashort optical pulses by using an integrated acousto-optic tunable filter,” *Optics Letters* **18**, 1505 (1993).
- [40] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, C. Spielmann, and P. Tournois, “Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter: pulse compression and shaping.” *Optics letters* **25**, 575–7 (2000).
- [41] J. Seres, A. Müller, E. Seres, K. O’Keeffe, M. Lenner, R. F. Herzog, D. Kaplan, C. Spielmann, and F. Krausz, “Sub-10-fs, terawatt-scale Ti:sapphire laser system,” *Optics Letters* **28**, 1832 (2003).



- [42] A. Weiner and I. Introduction, “REVIEW ARTICLE Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators,” *Review of Scientific Instruments* **71** (2000).
- [43] A. Monmayrant and B. Chatel, “New phase and amplitude high resolution pulse shaper,” *Review of Scientific Instruments* **75**, 2668 (2004).
- [44] A. Monmayrant, “Façonnage et caractérisation d’impulsions ultracourtes. Contrôle cohérent de systèmes simples.” (2005).
- [45] A. Weiner, D. Leaird, J. Patel, J. Wullert, and Others, “Programmable shaping of femtosecond optical pulses by use of 128-element liquid crystal phase modulator,” *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **28**, 908–920 (1992).
- [46] M. a. Dugan, J. X. Tull, and W. S. Warren, “High-resolution acousto-optic shaping of unamplified and amplified femtosecond laser pulses,” *Journal of the Optical Society of America B* **14**, 2348 (1997).
- [47] E. Zeek, K. Maginnis, S. Backus, U. Russek, M. Murnane, G. Mourou, H. Kapteyn, and G. Vdovin, “Pulse compression by use of deformable mirrors,” *Optics Letters* **24**, 493 (1999).
- [48] M. Hacker, G. Stobrawa, and R. Sauerbrey, “Micromirror SLM for femtosecond pulse shaping in the ultraviolet,” *Applied Physics B*: **76**, 711–714 (2003).
- [49] P. G. de Gennes, J. Prost, and R. Pelcovits, *The Physics of Liquid Crystals*, vol. 48 (Clarendon, Oxford (UK), 1993).
- [50] M. M. Wefers and K. A. Nelson, “Analysis of programmable ultrashort waveform generation using liquid-crystal spatial light modulators,” *Journal of the Optical Society of America B* **12**, 1343 (1995).
- [51] H. Wang, Z. Zheng, D. Leaird, A. Weiner, T. Dorschner, J. Fijol, L. Friedman, H. Nguyen, and L. Palmaccio, “20-fs pulse shaping with a 512-element phase-only liquid crystal modulator,” *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of* **7**, 718–727 (2001).

- [52] G. Stobrawa, M. Hacker, T. Feurer, D. Zeidler, M. Motzkus, and F. Reichel, “A new high-resolution femtosecond pulse shaper,” *Applied Physics B: Lasers and Optics* **72**, 627–630 (2001).
- [53] J. Vaughan, T. Feurer, K. Stone, and K. A. Nelson, “Analysis of replica pulses in femtosecond pulse shaping with pixelated devices,” *Optics Express* **14**, 1314 (2006).
- [54] C. Dorrer, F. Salin, F. Verluise, and J. Huignard, “Programmable phase control of femtosecond pulses by use of a nonpixelated spatial light modulator,” *Optics letters* **23**, 709–711 (1998).
- [55] P. Aubourg, J. P. Huignard, M. Hareng, and R. A. Mullen, “Liquid crystal light valve using bulk monocrystalline Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub> as the photoconductive material,” *Applied Optics* **21**, 3706 (1982).
- [56] T. Feurer, J. C. Vaughan, R. M. Koehl, and K. a. Nelson, “Multidimensional control of femtosecond pulses by use of a programmable liquid-crystal matrix.” *Optics letters* **27**, 652–4 (2002).
- [57] J. Vaughan, T. Feurer, and K. A. Nelson, “Automated two-dimensional femtosecond pulse shaping,” *JOSA B* **19**, 2489–2495 (2002).
- [58] J. C. Vaughan, T. Feurer, and K. a. Nelson, “Automated spatiotemporal diffraction of ultrashort laser pulses.” *Optics letters* **28**, 2408–10 (2003).
- [59] T. Hornung, J. C. Vaughan, T. Feurer, and K. a. Nelson, “Degenerate four-wave mixing spectroscopy based on two-dimensional femtosecond pulse shaping.” *Optics letters* **29**, 2052–4 (2004).
- [60] J. Vaughan, T. Hornung, T. Feurer, and K. A. Nelson, “Diffraction-based femtosecond pulse shaping with a two-dimensional spatial light modulator,” *Optics letters* **30**, 323–325 (2005).
- [61] E. Frumker and Y. Silberberg, “Femtosecond pulse shaping using a two-dimensional liquid-crystal spatial light modulator.” *Optics letters* **32**, 1384–6 (2007).

- [62] J. D. Jackson, *Classical electrodynamics* (Wiley, New York, 1975).
- [63] C. Froehly, A. Lacourt, and J. Vienot, “Notions de réponse impulsionnelle et de fonction de transfert temporelles des pupilles optiques, justifications expérimentales et applications,” *Nouv. Rev. Opt* **4**, 183–196 (1973).
- [64] F. Reynaud, F. Salin, and A. Barthelemy, “Measurement of phase shifts introduced by nonlinear optical phenomena on subpicosecond pulses,” *Optics Letters* **14**, 275 (1989).
- [65] L. Lepetit, G. Chériaux, and M. Joffre, “Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy,” *Journal of the Optical Society of America B* **12**, 2467 (1995).
- [66] C. Dorrer, N. Belabas, J.-P. Likforman, and M. Joffre, “Spectral resolution and sampling issues in Fourier-transform spectral interferometry,” *Journal of the Optical Society of America B* **17**, 1795 (2000).
- [67] J. Cooley and J. Tukey, “An algorithm for the machine calculation of complex Fourier series,” *Math. Comput* **19**, 297–301 (1965).
- [68] R. S. Pillai, C. Boudoux, G. Labroille, N. Olivier, I. Veilleux, E. Farge, M. Joffre, and E. Beaurepaire, “Multiplexed two-photon microscopy of dynamic biological samples with shaped broadband pulses Abstract :,” *Optics Express* **17**, 1695–1701 (2009).
- [69] E. Frumker and Y. Silberberg, “Phase and amplitude pulse shaping with two-dimensional phase-only spatial light modulators,” *JOSA B* **24**, 2940–2947 (2007).
- [70] P. Schlup, J. Wilson, K. Hartinger, and R. A. Bartels, “Dispersion balancing of variable-delay monolithic pulse splitters,” *Applied Optics* **46**, 5967 (2007).
- [71] J. W. Wilson, P. Schlup, and R. a. Bartels, “Ultrafast phase and amplitude pulse shaping with a single, one-dimensional, high-resolution phase mask.” *Optics express* **15**, 8979–87 (2007).

- [72] C. Dorrer and F. Salin, “Characterization of spectral phase modulation by classical and polarization spectral interferometry,” *Journal of the Optical Society of America B* **15**, 2331 (1998).
- [73] M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi, “Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry,” *Journal of the Optical Society of America* **72**, 156 (1982).
- [74] L. Cohen, “Time-frequency distributions-a review,” *Proceedings of the IEEE* **77**, 941–981 (1989).
- [75] J. Paye, “The chronocyclic representation of ultrashort light pulses,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **28**, 2262–2273 (1992).
- [76] T. Tanabe, H. Tanabe, Y. Teramura, and F. Kannari, “Spatiotemporal measurements based on spatial spectral interferometry for ultrashort optical pulses shaped by a Fourier pulse shaper,” *Journal of the Optical Society of America B* **19**, 2795 (2002).
- [77] T. Tanabe, F. Kannari, F. Korte, J. Koch, and B. Chichkov, “Influence of spatiotemporal coupling induced by an ultrashort laser pulse shaper on a focused beam profile,” *Applied Optics* **44**, 1092 (2005).
- [78] Danailov M.B. and Christov I.P., “Time-space Shaping of Light Pulses by Fourier Optical Processing,” *Journal of Modern Optics* **36**, 7 (1989).
- [79] M. M. Wefers and K. A. Nelson, “Space-time profiles of shaped ultrafast optical waveforms,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **32**, 161–172 (1996).
- [80] C. Dorrer and F. Salin, “Phase amplitude coupling in spectral phase modulation,” *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of* **4**, 342–345 (1998).
- [81] B. Sussman, R. Lausten, and A. Stolow, “Focusing of light following a 4-f pulse shaper: Considerations for quantum control,” *Physical Review A* **77** (2008).

- [82] F. Frei, A. Galler, and T. Feurer, “Space-time coupling in femtosecond pulse shaping and its effects on coherent control.” *The Journal of chemical physics* **130**, 034302 (2009).
- [83] J. Paye and A. Migus, “Space-time Wigner functions and their application to the analysis of a pulse shaper,” *Journal of the Optical Society of America B* **12**, 1480 (1995).
- [84] J. W. Goodman, *Introduction to Fourier Optics*, vol. 35 (McGraw Hill, New York, 1996), 2nd ed.
- [85] S. A. Rice, “New ideas for guiding the evolution of a quantum system.” *Science* **258**, 412–3 (1992).
- [86] W. S. Warren, H. Rabitz, and M. Dahleh, “Coherent control of quantum dynamics: the dream is alive.” *Science* **259**, 1581–9 (1993).
- [87] P. Nuernberger, G. Vogt, T. Brixner, and G. Gerber, “Femtosecond quantum control of molecular dynamics in the condensed phase.” *Physical chemistry chemical physics : PCCP* **9**, 2470–97 (2007).
- [88] M. Göppert-Mayer, “Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen,” *Annalen der Physik* **401**, 273–294 (1931).
- [89] W. Kaiser and C. Garrett, “Two-Photon Excitation in  $\text{CaF}_2$ :  $\text{Eu}^{2+}$ ,” *Physical Review Letters* **7**, 229–231 (1961).
- [90] B. A. Wilt, L. D. Burns, E. T. W. Ho, K. K. Ghosh, E. A. Mukamel, and M. J. Schnitzer, “Advances in Light Microscopy for Neuroscience,” *Annual review of neuroscience* **32**, 435–506 (2009).
- [91] W. Supatto, T. V. Truong, D. Débarre, and E. Beaurepaire, “Advances in multi-photon microscopy for imaging embryos,” *Current opinion in genetics & development* (2011).
- [92] F. Helmchen and W. Denk, “Deep tissue two-photon microscopy.” *Nature methods* **2**, 932–40 (2005).

## Références bibliographiques

---

- [93] K. Isobe, S. Kataoka, R. Murase, W. Watanabe, T. Higashi, S. Kawakami, S. Matsunaga, K. Fukui, and K. Itoh, “Stimulated parametric emission microscopy,” *Optics Express* **14**, 786 (2006).
- [94] S. Huang, A. A. Heikal, and W. W. Webb, “Two-photon fluorescence spectroscopy and microscopy of NAD(P)H and flavoprotein.” *Biophysical journal* **82**, 2811–25 (2002).
- [95] D. Meshulach and Y. Silberberg, “Coherent quantum control of multiphoton transitions by shaped ultrashort optical pulses,” *Physical Review A* **60**, 1287–1292 (1999).
- [96] K. A. Walowicz, I. Pastirk, V. V. Lozovoy, and M. Dantus, “Multiphoton Intrapulse Interference. 1. Control of Multiphoton Processes in Condensed Phases,” *The Journal of Physical Chemistry A* **106**, 9369–9373 (2002).
- [97] M. Salour, “Quantum interference effects in two-photon spectroscopy,” *Reviews of Modern Physics* **50**, 667–681 (1978).
- [98] B. Broers, L. Noordam, and H. van Linden van den Heuvell, “Diffraction and focusing of spectral energy in multiphoton processes,” *Physical Review A* **46**, 2749–2756 (1992).
- [99] P. Nuernberger, K. F. Lee, and M. Joffe, “Femtosecond spectroscopy from the perspective of a global multidimensional response function.” *Accounts of chemical research* **42**, 1433–41 (2009).
- [100] C. Xu, J. Guild, W. Webb, and W. Denk, “Determination of absolute two-photon excitation cross sections by in situ second-order autocorrelation.” *Optics letters* **20**, 2372 (1995).
- [101] C. Xu and W. W. Webb, “Measurement of two-photon excitation cross sections of molecular fluorophores with data from 690 to 1050 nm,” *Journal of the Optical Society of America B* **13**, 481 (1996).

- [102] K. Isobe, A. Suda, M. Tanaka, F. Kannari, H. Kawano, H. Mizuno, A. Miyawaki, and K. Midorikawa, “Fourier-transform spectroscopy combined with a 5-fs broadband pulse for multispectral nonlinear microscopy,” *Physical Review A* **77**, 1–13 (2008).
- [103] V. V. Lozovoy, I. Pastirk, K. A. Walowicz, and M. Dantus, “Multiphoton intrapulse interference 2. Control of two- and three-photon laser induced fluorescence with shaped pulses,” *The Journal of Chemical Physics* **118**, 3187 (2003).
- [104] J. M. Dela Cruz, I. Pastirk, V. V. Lozovoy, K. A. Walowicz, and M. Dantus, “Multiphoton Intrapulse Interference 3. Probing Microscopic Chemical Environments,” *The Journal of Physical Chemistry A* **108**, 53–58 (2004).
- [105] G. Labroille, R. S. Pillai, X. Solinas, C. Boudoux, N. Olivier, E. Beaurepaire, and M. Joffe, “Dispersion-based pulse shaping for multiplexed two-photon fluorescence microscopy,” *Optics letters* **35**, 3444–6 (2010).
- [106] M. Comstock, V. V. Lozovoy, I. Pastirk, and M. Dantus, “Multiphoton intrapulse interference 6. Binary phase shaping,” *Optics Express* **12**, 1061 (2004).
- [107] V. Lozovoy, B. Xu, J. Shane, and M. Dantus, “Selective nonlinear optical excitation with pulses shaped by pseudorandom Galois fields,” *Physical Review A* **74** (2006).
- [108] N. Forget, “Communication privée,” (2008).
- [109] K. Isobe, A. Suda, M. Tanaka, F. Kannari, H. Kawano, H. Mizuno, A. Miyawaki, and K. Midorikawa, “Multifarious control of two-photon excitation of multiple fluorophores achieved by phase modulation of ultra-broadband laser pulses,” *Optics Express* **17**, 13737 (2009).
- [110] R. Judson and H. Rabitz, “Teaching lasers to control molecules,” *Physical Review Letters* **68**, 1500–1503 (1992).
- [111] A. ASSION, T. BAUMERT, M. BERGT, T. BRIXNER, B. KIEFER, V. SEYFRIED, M. STREHLE, and G. GERBER, “Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses,” *Science* **282**, 919–922 (1998).

- [112] T. Hornung, R. Meier, D. Zeidler, K.-L. Kompa, D. Proch, and M. Motzkus, “Optimal control of one- and two-photon transitions with shaped femtosecond pulses and feedback,” *Applied Physics B: Lasers and Optics* **71**, 277–284 (2000).
- [113] T. Brixner, N. H. Damrauer, P. Niklaus, and G. Gerber, “Photoselective adaptive femtosecond quantum control in the liquid phase.” *Nature* **414**, 57–60 (2001).
- [114] R. Bartels, S. Backus, E. Zeek, L. Misoguti, G. Vdovin, I. Christov, M. Murnane, and H. Kapteyn, “Shaped-pulse optimization of coherent emission of high-harmonic soft X-rays,” *Nature* **406**, 164–6 (2000).
- [115] W. Wohlleben, T. Buckup, J. L. Herek, and M. Motzkus, “Coherent control for spectroscopy and manipulation of biological dynamics.” *Chemphyschem : a European journal of chemical physics and physical chemistry* **6**, 850–7 (2005).
- [116] L. Bonacina, J. Extermann, A. Rondi, V. Boutou, and J.-P. Wolf, “Multiobjective genetic approach for optimal control of photoinduced processes,” *Physical Review A* **76** (2007).
- [117] D. Zeidler, S. Frey, K.-L. Kompa, and M. Motzkus, “Evolutionary algorithms and their application to optimal control studies,” *Physical Review A* **64** (2001).
- [118] K. Deb, A. Pratap, S. Agarwal, and T. Meyarivan, “A fast and elitist multiobjective genetic algorithm: NSGA-II,” *IEEE Transactions on Evolutionary Computation* **6**, 182–197 (2002).
- [119] N. Dudovich, D. Oron, and Y. Silberberg, “Quantum Control of the Angular Momentum Distribution in Multiphoton Absorption Processes,” *Physical Review Letters* **92**, 1–4 (2004).
- [120] A. Pe’er, B. Dayan, A. Friesem, and Y. Silberberg, “Temporal Shaping of Entangled Photons,” *Physical Review Letters* **94**, 1–4 (2005).
- [121] V. V. Lozovoy and M. Dantus, “Systematic control of nonlinear optical processes using optimally shaped femtosecond pulses.” *Chemphyschem : a European journal of chemical physics and physical chemistry* **6**, 1970–2000 (2005).



- [122] I. A. Walmsley and C. Dorrer, “Characterization of ultrashort electromagnetic pulses,” *Advances in Optics and Photonics* **1**, 308 (2009).
- [123] D. Kane and R. Trebino, “Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **29**, 571–579 (1993).
- [124] J. Paye, “How to measure the amplitude and phase of an ultrashort light pulse with an autocorrelator and a spectrometer,” *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **30**, 2693–2697 (1994).
- [125] C. Iaconis and I. Walmsley, “Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses,” *Optics Letters* **23**, 792 (1998).
- [126] R. Trebino, *Frequency-resolved optical gating: the measurement of ultrashort laser pulses* (Kluwer Academic, 2000).
- [127] M. Anderson, A. Monmayrant, S.-P. Gorza, P. Wasylczyk, and I. Walmsley, “SPIDER: A decade of measuring ultrashort pulses,” *Laser Physics Letters* **5**, 259–266 (2008).
- [128] C. Dorrer, P. Londero, and I. A. Walmsley, “Homodyne detection in spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction,” *Optics Letters* **26**, 1510 (2001).
- [129] B. von Vacano, T. Buckup, and M. Motzkus, “Shaper-assisted collinear SPIDER: fast and simple broadband pulse compression in nonlinear microscopy,” *Journal of the Optical Society of America B* **24**, 1091 (2007).
- [130] J. Sung, B.-C. Chen, and S.-H. Lim, “Single-beam homodyne SPIDER for multi-photon microscopy,” *Optics Letters* **33**, 1404 (2008).
- [131] A. Monmayrant, M. Joffe, T. Oksenhendler, R. Herzog, D. Kaplan, and P. Tournois, “Time-domain interferometry for direct electric-field reconstruction by use of an acousto-optic programmable filter and a two-photon detector,” *Optics Letters* **28**, 278 (2003).

- [132] N. Forget, V. Crozatier, and T. Oksenhendler, “Pulse-measurement techniques using a single amplitude and phase spectral shaper,” *Journal of the Optical Society of America B* **27**, 742 (2010).
- [133] P. Schön and S. Brasselet, “Application of single-beam homodyne SPIDER for the control of complex spectral phase profiles,” *Optics Letters* **36**, 805 (2011).
- [134] K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, R. Trebino, B. Kohler, and K. Wilson, “Pulse retrieval in frequency-resolved optical gating based on the method of generalized projections,” *Optics Letters* **19**, 2152 (1994).
- [135] D. Kane, “Recent progress toward real-time measurement of ultrashort laser pulses,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **35**, 421–431 (1999).
- [136] D. Reid, “Algorithm for complete and rapid retrieval of ultrashort pulse amplitude and phase from a sonogram,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **35**, 1584–1589 (1999).
- [137] D. N. Fittinghoff, J. A. Squier, C. Barty, J. N. Sweetser, R. Trebino, and M. Müller, “Collinear type II second-harmonic-generation frequency-resolved optical gating for use with high-numerical-aperture objectives,” *Optics Letters* **23**, 1046 (1998).
- [138] I. Amat-Roldán, I. G. Cormack, P. Loza-Alvarez, and D. Artigas, “Measurement of electric field by interferometric spectral trace observation,” *Optics Letters* **30**, 1063 (2005).
- [139] I. Amat-Roldán, I. G. Cormack, P. Loza-Alvarez, E. J. Gualda, and D. Artigas, “Ultrashort pulse characterisation with SHG collinear-FROG,” *Optics Express* **12**, 1169 (2004).
- [140] J. Extermann, L. Bonacina, F. Courvoisier, D. Kiselev, Y. Mugnier, R. Le Dantec, C. Galez, and J.-P. Wolf, “Nano-FROG: Frequency resolved optical gating by a nanometric object,” *Optics Express* **16**, 10405 (2008).
- [141] A. Weiner, “Effect of group velocity mismatch on the measurement of ultrashort optical pulses via second harmonic generation,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **19**, 1276–1283 (1983).

- [142] A. Galler and T. Feurer, “Pulse shaper assisted short laser pulse characterization,” *Applied Physics B* **90**, 427–430 (2008).
- [143] D. Yelin, D. Meshulach, and Y. Silberberg, “Adaptive femtosecond pulse compression,” *Optics Letters* **22**, 1793 (1997).
- [144] T. Baumert, T. Brixner, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, “Femtosecond pulse shaping by an evolutionary algorithm with feedback,” *Applied Physics B: Lasers and Optics* **65**, 779–782 (1997).
- [145] V. V. Lozovoy, I. Pastirk, and M. Dantus, “Multiphoton intrapulse interference 4. Ultrashort laser pulse spectral phase characterization and compensation,” *Optics Letters* **29**, 775 (2004).
- [146] B. Xu, J. M. Gunn, J. M. D. Cruz, V. V. Lozovoy, and M. Dantus, “Quantitative investigation of the multiphoton intrapulse interference phase scan method for simultaneous phase measurement and compensation of femtosecond laser pulses,” *Journal of the Optical Society of America B* **23**, 750 (2006).
- [147] V. V. Lozovoy, B. Xu, Y. Coello, and M. Dantus, “Direct measurement of spectral phase for ultrashort laser pulses.” *Optics express* **16**, 592–7 (2008).
- [148] Y. Coello, V. V. Lozovoy, T. C. Gunaratne, B. Xu, I. Borukhovich, C.-h. Tseng, T. Weinacht, and M. Dantus, “Interference without an interferometer: a different approach to measuring, compressing, and shaping ultrashort laser pulses,” *Journal of the Optical Society of America B* **25**, A140 (2008).
- [149] J. A. Armstrong, “Measurement of picosecond laser pulse widths,” *Applied Physics Letters* **10**, 16 (1967).
- [150] K. Sala, G. Kenney-Wallace, and G. Hall, “CW autocorrelation measurements of picosecond laser pulses,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **16**, 990–996 (1980).
- [151] T. Mindl, P. Hefferle, S. Schneider, and F. Dorr, “Characterisation of a train of subpicosecond laser pulses by fringe resolved autocorrelation measurements,” *Applied Physics B Photophysics and Laser Chemistry* **31**, 201–207 (1983).

## Références bibliographiques

---

- [152] J.-C. M. Diels, J. J. Fontaine, I. C. McMichael, and F. Simoni, “Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy,” *Applied Optics* **24**, 1270 (1985).
- [153] K. Naganuma, K. Mogi, and H. Yamada, “General method for ultrashort light pulse chirp measurement,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **25**, 1225–1233 (1989).
- [154] J. K. Ranka, A. L. Gaeta, A. Baltuska, M. S. Pshenichnikov, and D. A. Wiersma, “Autocorrelation measurement of 6-fs pulses based on the two-photon-induced photocurrent in a GaAsP photodiode,” *Optics Letters* **22**, 1344 (1997).
- [155] N. Scherer, R. Carlson, A. Matro, and M. Du, “Fluorescence-detected wave packet interferometry: Time resolved molecular spectroscopy with sequences of femtosecond phase-locked pulses,” *The Journal of chemical* **95**, 1487 (1991).
- [156] B. Xu, Y. Coello, V. V. Lozovoy, D. A. Harris, and M. Dantus, “Pulse shaping of octave spanning femtosecond laser pulses,” *Optics Express* **14**, 10939 (2006).
- [157] B. Xu, Y. Coello, V. V. Lozovoy, D. A. Harris, and M. Dantus, “Pulse Shaping of Octave Spanning Femtosecond Laser Pulses,” in “2007 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO),” (IEEE, 2007), pp. 1–2.
- [158] A. Baltuska, M. Pshenichnikov, and D. Wiersma, “Second-harmonic generation frequency-resolved optical gating in the single-cycle regime,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **35**, 459–478 (1999).
- [159] D. Fittinghoff, A. Millard, J. Squier, and M. Muller, “Frequency-resolved optical gating measurement of ultrashort pulses passing through a high numerical aperture objective,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **35**, 479–486 (1999).
- [160] P. Desjardins, A. Dumoulin, C. Gasnier, B. Grena, and A. Hudavert, “Rapport final de Projet Scientifique Collectif Construction d’une ligne d’interféromètre,” Tech. rep. (2010).

- [161] A. Mougél, “Stage de Recherche M1: Façonnage Diffractif d’Impulsions Femtosecondes et Application à la Dynamique Spectrale dans une Fibre Optique,” Tech. Rep. 1, Ecole Polytechnique (2010).
- [162] G. Stibenz and G. Steinmeyer, “Interferometric frequency-resolved optical gating,” *Optics Express* **13**, 2617 (2005).
- [163] M. Muller, J. Squier, and G. J. Brakenhoff, “Measurement of femtosecond pulses in the focal point of a high-numerical-aperture lens by two-photon absorption,” *Optics Letters* **20**, 1038 (1995).
- [164] J. M. Dela Cruz, I. Pastirk, M. Comstock, V. V. Lozovoy, and M. Dantus, “Use of coherent control methods through scattering biological tissue to achieve functional imaging.” *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **101**, 16996–7001 (2004).
- [165] J. M. Dela Cruz, I. Pastirk, M. Comstock, and M. Dantus, “Multiphoton Intrapulse Interference 8. Coherent control through scattering tissue,” *Optics Express* **12**, 4144 (2004).
- [166] P. Tournois, “Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems,” *Optics communications* **140**, 245–249 (1997).
- [167] E. Frumker, D. Oron, D. Mandelik, and Y. Silberberg, “Femtosecond pulse-shape modulation at kilohertz rates,” *Optics Letters* **29**, 890 (2004).
- [168] E. Frumker and Y. Silberberg, “Femtosecond pulse shaping using a two-dimensional liquid-crystal spatial light modulator,” *Optics Letters* **32**, 1384 (2007).
- [169] A. M. Larson and A. T. Yeh, “Ex vivo characterization of sub-10-fs pulses,” *Optics Letters* **31**, 1681 (2006).
- [170] E. Wieschaus and C. Nüsslein-Volhard, “Looking at embryos in *Drosophila*: A practical approach,” (1986).

## Références bibliographiques

---

- [171] I. Davis, C. H. Girdham, and P. H. O’Farrell, “A nuclear GFP that marks nuclei in living *Drosophila* embryos; maternal supply overcomes a delay in the appearance of zygotic fluorescence.” *Developmental biology* **170**, 726–9 (1995).
- [172] W. Amir, R. Carriles, E. E. Hoover, T. a. Planchon, C. G. Durfee, and J. a. Squier, “Simultaneous imaging of multiple focal planes using a two-photon scanning microscope.” *Optics letters* **32**, 1731–3 (2007).
- [173] R. Carriles, K. E. Sheetz, E. E. Hoover, J. a. Squier, and V. Barzda, “Simultaneous multifocal, multiphoton, photon counting microscopy.” *Optics express* **16**, 10364–71 (2008).
- [174] E. Chandler, E. Hoover, J. Field, K. Sheetz, W. Amir, R. Carriles, S.-Y. Ding, and J. Squier, “High-resolution mosaic imaging with multifocal, multiphoton photon-counting microscopy.” *Applied optics* **48**, 2067–77 (2009).
- [175] W. Langbein, I. Rocha-Mendoza, and P. Borri, “Single source coherent anti-Stokes Raman microspectroscopy using spectral focusing,” *Applied Physics Letters* **95**, 081109 (2009).
- [176] I. Rocha-Mendoza, W. Langbein, P. Watson, and P. Borri, “Differential coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy with linearly chirped femtosecond laser pulses.” *Optics letters* **34**, 2258–60 (2009).
- [177] H.-W. AI, N. C. SHANER, C. ZIHAO, R. Y. TSIEN, and R. E. CAMPBELL, “Exploration of new chromophore structures leads to the identification of improved blue fluorescent proteins,” *Biochemistry* **46**, 5904–5910 (2007).
- [178] H.-w. Ai, S. G. Olenych, P. Wong, M. W. Davidson, and R. E. Campbell, “Hue-shifted monomeric variants of *Clavularia* cyan fluorescent protein: identification of the molecular determinants of color and applications in fluorescence imaging.” *BMC biology* **6**, 13 (2008).
- [179] S. E. Tillo, T. E. Hughes, N. S. Makarov, A. Rebane, and M. Drobizhev, “A new approach to dual-color two-photon microscopy with fluorescent proteins.” *BMC biotechnology* **10**, 6 (2010).

- [180] M. Drobizhev, N. S. Makarov, S. E. Tillo, T. E. Hughes, and A. Rebane, “Two-photon absorption properties of fluorescent proteins.” *Nature methods* **8**, 393–9 (2011).
- [181] P. H. Ribeiro, C. Schwob, A. Maître, and C. Fabre, “Sub-shot-noise high-sensitivity spectroscopy with optical parametric oscillator twin beams.” *Optics letters* **22**, 1893–5 (1997).
- [182] J. Gao, F. Cui, C. Xue, C. Xie, and P. Kunchi, “Generation and application of twin beams from an optical parametric oscillator including an alpha-cut KTP crystal.” *Optics letters* **23**, 870–2 (1998).
- [183] F. Marin, “Demonstration of high sensitivity spectroscopy with squeezed semiconductor lasers,” *Optics Communications* **140**, 146–157 (1997).
- [184] C. R. Rao, “Information and accuracy attainable in the estimation of statistical parameters,” *Bull Calcutta Math Soc* **37**, 81–91 (1945).
- [185] C. Caves, K. Thorne, R. Drever, V. Sandberg, and M. Zimmermann, “On the measurement of a weak classical force coupled to a quantum-mechanical oscillator. I. Issues of principle,” *Reviews of Modern Physics* **52**, 341–392 (1980).
- [186] C. Caves, “Quantum-mechanical noise in an interferometer,” *Physical Review D* **23**, 1693–1708 (1981).
- [187] R. Slusher, L. Hollberg, B. Yurke, J. Mertz, and J. Valley, “Observation of Squeezed States Generated by Four-Wave Mixing in an Optical Cavity,” *Physical Review Letters* **55**, 2409–2412 (1985).
- [188] L.-A. Wu, H. Kimble, J. Hall, and H. Wu, “Generation of Squeezed States by Parametric Down Conversion,” *Physical Review Letters* **57**, 2520–2523 (1986).
- [189] N. Treps, N. Grosse, W. P. Bowen, C. Fabre, H.-A. Bachor, and P. K. Lam, “A quantum laser pointer.” *Science* **301**, 940–3 (2003).

## Références bibliographiques

---

- [190] J. K. Ranka, R. S. Windeler, and A. J. Stentz, “Visible continuum generation in air-silica microstructure optical fibers with anomalous dispersion at 800 nm,” *Optics Letters* **25**, 25 (2000).
- [191] K. M. Hilligsoe, T. V. Andersen, H. N. Paulsen, C. K. Nielsen, K. Molmer, S. Keiding, R. Kristiansen, K. P. Hansen, and J. J. Larsen, “Supercontinuum generation in a photonic crystal fiber with two zero dispersion wavelengths,” *Optics Express* **12**, 1045 (2004).



## Résumé de la thèse

Cette thèse présente l'utilisation d'impulsions ultracourtes pour des expériences de microscopie non-linéaire et d'optique quantique.

Dans un premier temps, nous exposerons plusieurs techniques de façonnage d'impulsions et nous détaillerons en particulier le fonctionnement et la caractérisation de notre dispositif de façonnage. Nous étudierons l'utilisation d'un masque de phase 2D diffractif adressé optiquement qui permet un façonnage à la fois en phase et en amplitude spectrale. Par la suite, nous verrons comment le façonnage d'impulsions ultra-courtes peut être un outil efficace pour sélectionner les fluorophores excités en microscopie à deux photons. Pour cela, nous présenterons une expérience de contrôle cohérent de l'absorption à deux photons dans un embryon de drosophile vivant avec notre système de façonnage programmable. Ensuite nous décrirons un schéma de façonnage simplifié à base de prismes, qui, conjointement avec une approche de multiplexage temporel des impulsions, permet d'imager simultanément plusieurs fluorophores.

Enfin, nous discuterons l'utilisation d'impulsions ultracourtes pour des expériences de mesures de temps et de dispersion à la limite quantique. Nous détaillerons en particulier une étude théorique et expérimentale d'un système de façonnage original à base de matériaux biréfringents pour produire la dérivée temporelle d'un champ électrique ou bien la dérivée temporelle de son enveloppe.

**Mots-clefs :** Impulsions optiques ultra-courtes ; Façonnage d'impulsions ; Microscopie non-linéaire ; Mesure optimale.

## Abstract

This thesis presents the application of ultrashort pulses in the context of multiphoton microscopy and quantum optics. We will first introduce some pulse shaping techniques and we will detail in particular the operation and the characterization of our pulse shaping apparatus. We will study an optically addressed diffractive 2D phase mask, allowing both spectral and phase shaping. Then, we will see how pulse shaping can be an effective tool providing tunable selective fluorophore excitation in two-photon microscopy. Thus, we will present an experiment of coherent control of the 2-photon absorption in a developing drosophila embryo. Afterwards, we will describe a prism-based pulse shaping scheme in conjunction with a time-multiplexing approach of the pulses that allowed the simultaneous acquisition of multiple fluorophores.

Ultimately, we will present the application of ultrashort pulses to measure time and dispersion at the standard quantum limit. In particular we will detail theoretically and experimentally a new pulse shaping scheme based on birefringent materials in order to produce the temporal derivative of the electric field or the temporal derivative of its envelope.

**Keywords:** Ultrafast optics; Pulse shaping; Nonlinear microscopy; Optimal measurement.